

高融点金属イオン源の開発と
イオンビームデポジションへの応用
に関する研究

1989年3月

吉田 壽一

寄	贈
吉田善一氏	昭和 年 月 日

高融点金属イオン源の開発と イオンビームデポジションへの応用 に関する研究

1989年3月

吉 田 善 一

目 次

第1章 序 論	3
1.1 本研究の背景と対象	3
1.2 イオンビームデポジションとその問題点	4
1.2.1 種々の金属イオン源	5
1.2.2 種々のイオンビーム減速系	7
1.2.3 イオンビームによる膜形成	20
1.3 本研究の目的と意義	21
1.4 本論文の構成と概要	22
参考文献	23
第2章 金属イオン源	25
2.1 P I G構造小型マイクロ波金属イオン源の構造	25
2.2 P I G構造小型マイクロ波金属イオン源の動作原理	30
2.3 低融点用P I G構造小型マイクロ波金属イオン源	32
2.4 実験結果と考察	34
2.4.1 質量スペクトル	34
2.4.2 放電特性	38
2.4.3 アンテナとプラズマとの結合	51
2.4.4 考察	52
2.5 まとめ	54
参考文献	55
第3章 イオンビーム膜堆積装置	56
3.1 イオンビーム軌道解析	56
3.2 E × B型イオンビーム膜堆積装置	62
3.2.1 構成と設計指針	62
3.2.2 実験結果	74

3.3	ダブルイオンビーム膜堆積装置	79
3.3.1	構成と設計指針	79
3.3.2	実験結果	87
3.4	まとめ	97
	参考文献	98
第4章	イオンビームによる膜形成	99
4.1	Ta ₂ O ₅ 薄膜の形成	100
4.1.1	反応性イオンビーム法	100
4.1.2	酸素イオンビーム照射法	104
4.1.3	ダブルイオンビーム法	107
4.1.4	デバイス応用	111
4.2	その他の化合物	113
4.3	まとめ	119
	参考文献	120
第5章	結 論	121
付録A.	マイクロ波発振器とイオンビーム	123
付録B.	イオン源内の壁面およびアンテナでのイオン消滅	126
付録C.	アンテナの形状と材質	133
C.1	アンテナの径	133
C.2	酸素プラズマに対するアンテナ材質	134
謝 辞		139

第1章 序 論

1.1 本研究の背景と対象

半導体を中心とした電子デバイスの分野では、微細化、高集積化、積層化に伴い、薄膜加工技術において、三次元方向に原子オーダー ($\sim 10 \text{ \AA}$) の制御性が要求されている。それを実現するためには、現行の薄膜加工技術だけでは不十分であると考えられている。特に、高度の機能をもった超薄膜形成や高性能の被膜形成には、従来の熱的手法や化学的手法では制御パラメーターの自由度が少なすぎるため、従来技術だけではデバイスの特性や設計に制限が出てきてしまう。そこで、現在、低ガス圧領域 ($10^{-3} \sim 10^{-1} \text{ Torr}$) や高真空中 ($10^{-8} \sim 10^{-4} \text{ Torr}$) でイオンを用いる新しいプロセスが盛んに開発されている。イオンを使用した表面処理にはプラズマ法とイオンビーム法がある。イオンビーム法はイオンを高真空領域へ引き出して利用する方法で、プラズマ雰囲気中で表面処理をおこなうプラズマ法にくらべて、放電維持用ガスや放電の状態に影響されることなく、良質の表面処理をおこなうことができる。この方法の一つに一次イオンビームデポジション法 (primary ion beam deposition; 以下 I B D と略す) がある。

I B D は十分低いイオンエネルギーによるイオンの直接デポジションを用いた薄膜形成法である。特に、質量分離方式の I B D 装置では、膜形成に必要なイオンのみを選ぶことができるので、不純物の混入が少なく、高純度薄膜の作成に適している。また、デポジットするイオンの量と、そのエネルギーをそれぞれ独立に制御することができるので、原子オーダーでの表面反応や結晶性の制御が可能である。これに比べ、スパッタリング法では、形成膜の純度をターゲット材料の純度以上にすることは困難である。特に、高融点金属はまわりがどんどん熱くなってもなかなか融解しようとしないう頑固さをもつ反面、不純物と簡単に結びついてしまう性格をもっているために、高融点金属を用いた薄膜では微量の不純物が電気特性に悪影響を及ぼす場合がある¹⁾。また、C V D (chemical vapor deposition; 化学気相成長) 法では、化合物ガスを使用するために不純物がどうしても含まれてしまう。それに、熱反応が主であるために、結晶性の制御や基板材質の選択が困難である。それに対して、M B E (molecular beam epitaxy; 分子線エピタキシー) 法は結晶性の制御には適しているが、炉を使用するために高融点材料を用いた成膜は困難である。したがって、I B D 技術を確立することは、現状のプロセスでは作製が困難な次世代のデバイスを

開発するうえで、是非とも必要な根本的技術となる。それと共に、高融点金属は核融合、宇宙開発、エレクトロニクスといったハイテク諸分野で、これからますます必要とされるため、高品質の材料供給を可能にする高融点金属イオン源も開発する必要がある。

そこで、本研究は

- (1) 膜堆積に必要な量の高融点金属イオンが安定に得られるイオン源を開発し、
- (2) 化合物形成に必要なイオンビームの複合化技術を確立

することにより、次世代の電子デバイスを実現するのに必要な、精密にエネルギー制御され、かつ、不純物混入のないイオンビームデポジション技術の確立を図ることを目的としている。

1.2 イオンビームデポジションとその問題点

I B D装置はデポジットする物質のビームを用い、基本的には、イオン源、イオンビーム輸送系、および蒸着室の3つの部分より成り立っている。I B Dは、ビーム輸送の途中で質量分離をおこなうことにより単一種のイオンビームのみを選別し、純粋で単一エネルギーのビームをつくることができる。この方式を用いて膜形成をおこなうためには、膜堆積に十分な量のイオンを基板に供給しなければならない。これは一般に金属イオンである。また、イオンの流量は、イオン源内のプラズマからイオンのみを電位差で引き出すとき、空間電荷によって制限される。そして、適当な電流量が得られると、今度は空間電荷反発によるビームの広がりにより、輸送が困難になる。そこで、より多くのイオンを基板に供給するためには、高電圧でイオンを引き出し、高エネルギー（数十keV）でイオンを輸送し、その後、数十eVから数百eVまでの低エネルギーにイオンビームを減速するのが得策である。

低エネルギーイオンビームを用いて薄膜を形成しようとするとき、そのエネルギー範囲はイオン種の自己スパッタ率によって決定されると考えてよい。イオンのエネルギーはスパッタリングにより膜の形成が妨げられることがないように十分小さくする必要があり、自己スパッタ率=1となるエネルギーが膜形成可能な上限エネルギーとなる。表1.1に自己スパッタ率が1となるエネルギーを示す²⁾。一方、イオン源より引き出されたイオンビームには有限のエネルギー幅が存在し、これは数eV以上である。したがって、薄膜形成に

必要なイオンビームの減速系は十数eV～数百eVのエネルギーまでイオンビームを減速する性能を有する必要がある。

表1.1自己スパッタ率

イオン種	自己スパッタ率が1のエネルギー
Fe ⁺	1.5～2.0keV
Co ⁺	1.0～1.5
Ni ⁺	0.8～1.0
Cu ⁺	0.3～0.4
Zn ⁺	0.3～0.4
Sn ⁺	0.45～0.5
Ge ⁺	0.4～0.5
Si ⁺	0.7～0.8

1.2.1 種々の金属イオン源

金属イオン源は高エネルギー物理学への応用から工業応用まで、物理学、化学、工学の分野に極めて利用範囲が広い。初期の頃の金属イオン源は、主に、質量スペクトル分析や同位体分離に用いられた。現在、開発の主目標は高エネルギー物理学研究のための加速器用と半導体デバイス開発のためのイオン注入用イオン源が主流を占めている。しかしながら、一般的に、固体からイオンを得る技術は、ガスイオン源の開発ほど盛んにはおこなわれていない。固体からイオンを得る一般的な方法には、イオン化すべき物質の蒸気をイオン源内に発生させる方法とスパッタリング法とがある。現在まで、加速器用を中心にいろいろなタイプの金属イオン源が開発されてきた。

図1.1は米国のLawrence Berkeley研究所で開発された冷陰極P I G (Penning ionization gauge) 型のスパッタリングイオン源³⁾を示す。このイオン源は、冷陰極カソードとアノード電極との間でパルス状のアーク放電を起こし、電子飛程の実行長を増すために磁界を用いたものであり、多価イオンの生成を目的としたものである。

図1.2は英国のHarwell原子力研究所で開発されたHill&Nelson型のスパッタリングイオン

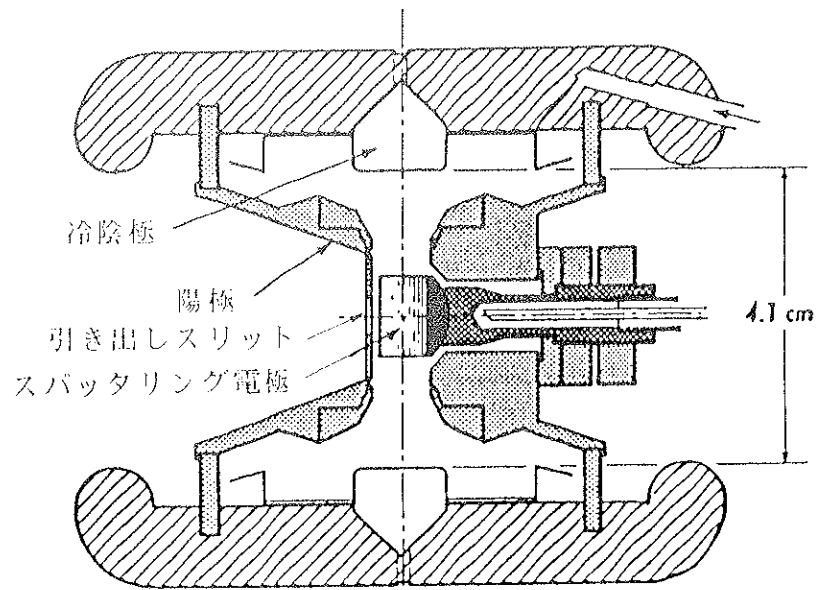


図1.1 冷陰極PIG型のスパッタリングイオン源

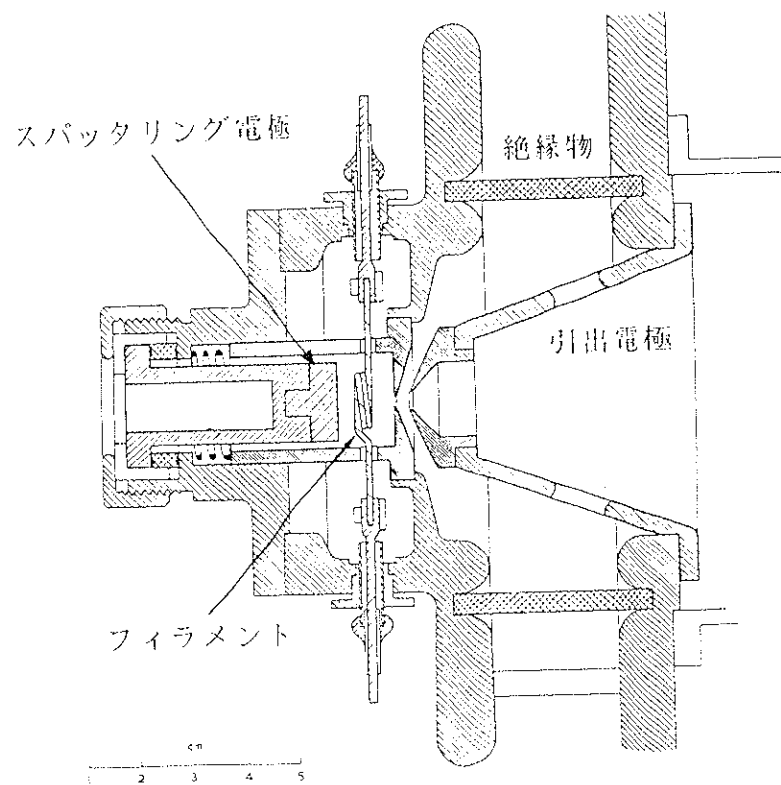


図1.2 Hill & Nelson型のスパッタリングイオン源

源¹⁾の構造図を示す。このイオン源は、フィラメントを用いており、電子衝撃によってアルゴンのようなキャリアガスをアーク放電し、外部のソレノイドにより約300Gの軸方向磁界をかけてプラズマを中心軸上に集中させ、金属ターゲットをスパッタさせる。これらのスパッタリング型のイオン源は、イオン化できるガスによりターゲットをスパッタさせて、放電中でスパッタ物をイオン化させるものである。このタイプは、放電中でスパッタリングできる物質であればどんな物のイオンでも作ることができる。スパッタリングは、イオンがビームとして引き出される方向とは逆方向のイオン源室の端にイオン化したい物質を置き、その表面に数キロボルトでイオンを引き寄せることにより効率的におこなえる。スパッタ物の粒子は弾き出され、直接イオン化領域に入って、イオン化され、ターゲットとは反対方向に放電維持用ガス（スパッタリング用ガス）のイオンと一緒に引き出される。

図1.3は英国のHarwell原子力研究所で開発されたFreeman型イオン源⁵⁾の原理構造図を示す。このイオン源は、同位体分離のために開発された。特徴は、長いイオン引き出しスリットとこれと平行して走る棒状フィラメントの間に発生する強力なアークから、直接イオンを引き出すので、mA級のイオンビームの発生が可能であることである。金属蒸気発生炉から蒸気をプラズマ生成室に導入することにより、金属イオンを得ることができるので、大電流のイオン注入装置によく利用されている。また、最近では、機能性材料の合成にも利用されようとしている。しかしながら、炉を用いるため、高融点金属イオンの生成は困難である。

これらのイオン源は加速器や大型イオン注入用に開発されたために、大型で消費電力も大きい。また、Hill&Nelson型とFreeman型はフィラメントを用いているために、スパッタ粒子の付着やスパッタリングによる消耗があるので、フィラメントの寿命に限界があり、長時間運転が困難である。また、冷陰極PIG型は連続運転では放電が安定しにくいという問題点があった。すなわち、現在のところ、高融点金属イオン源で物性応用に適したものはないと思われる。そこで、イオンビームデポジション用に小型で安定な高融点金属用イオン源を開発する必要がある。

1.2.2 種々のイオンビーム減速系

イオンビーム減速系の一般的な留意点として次の項目があげられる。

- ① 低速イオンビームの空間電荷による発散を抑えるため、減速系には集束レンズ効

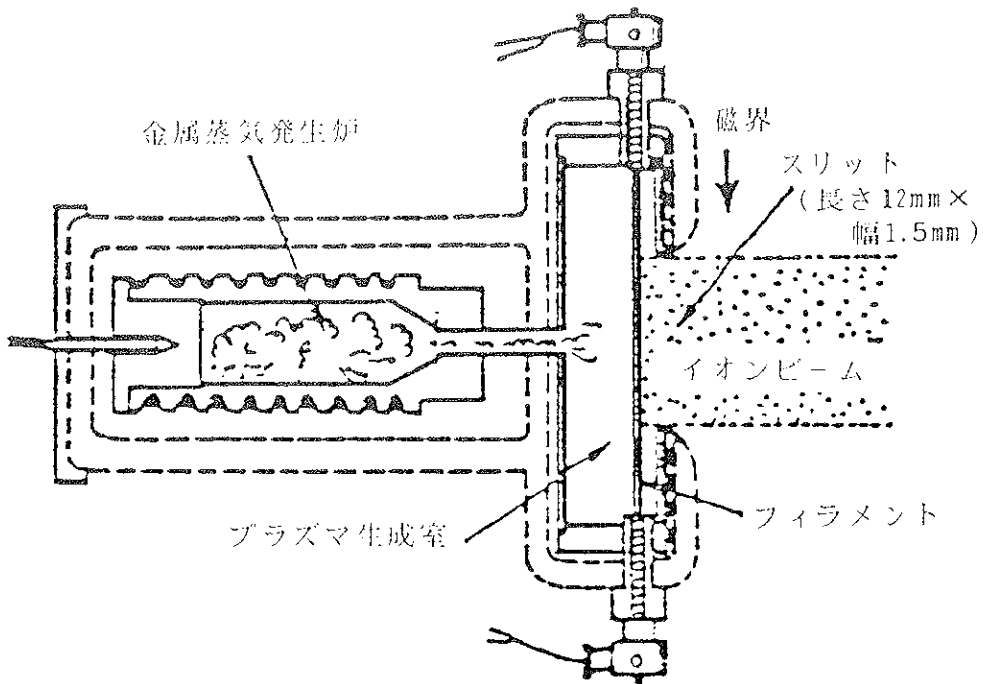


図1.3 Freeman型イオン源

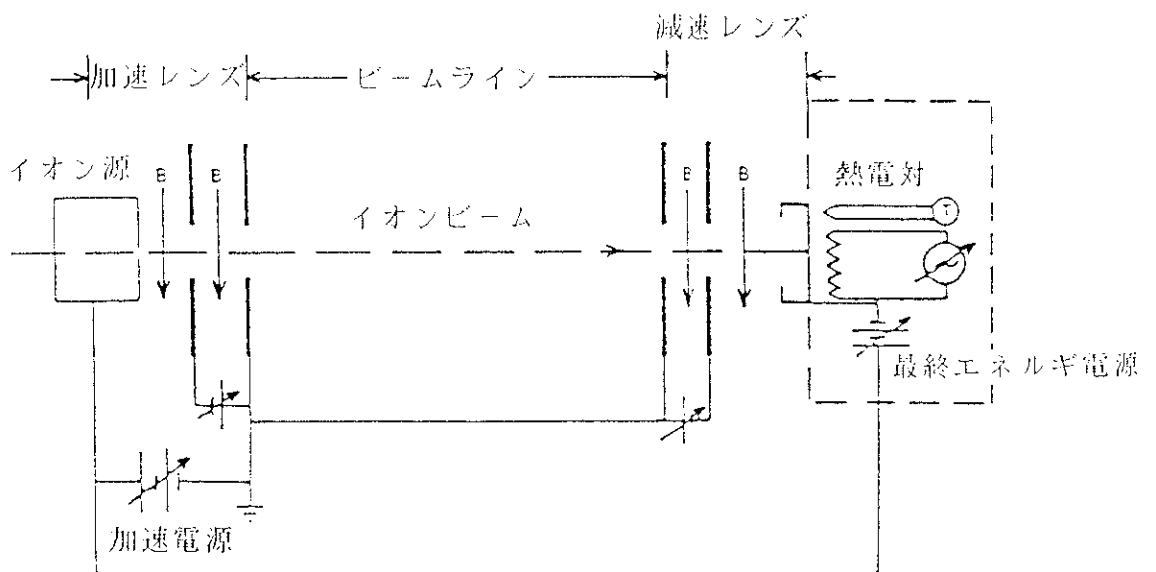


図1.4 Freemanらが設計した減速系

果を持たせる。

- ② 荷電交換によって発生する高速中性粒子が基板へ入射しないようにする。
- ③ ビーム中に含まれる電子は正イオンの減速電界中で加速されるので、減速電界の手前で電子を除去する。
- ④ 基板へ低速イオンビームが入射した時に放出される二次電子を抑えることにより、入射イオン電流の測定をする。

Freemanらはイオンビームの減速系の設計に関しての検討を詳細におこなっている³⁾。

図1.4はFreemanらが設計した減速系を示す。上記した留意点に対し、Freemanらはそれぞれを考慮した設計をおこなっている。まず①に対しては、空間電荷による発散はイオンの速度が遅い程、大きくなるので、飛行距離をできるだけ少なくするためにターゲットの直前で減速している。すなわち、数keV以下のイオンビームを大量に輸送することは困難なので、一般に、数十keVでイオンを輸送して、イオンビームを付着に必要なエネルギーまで減速するのは基板の直前でおこなわれる。また、減速レンズ (retardation lens) を設け、イオンビームの減速と集束を同時におこなっている。②に対してはゴニオメーターを用いて、基板とその手前の減速電極の軸を入射ビーム (高速) の軸とずらすことによって、イオンビームの減速と偏向を同時におこなっている。図1.5に示すように、この方法により、高速中性粒子の基板への入射を防いでいる。③に対しては、ビーム中に含まれる電子は主に、図1.4のビームラインをビームが走行中に残留ガスをイオン化させるときや、レンズの収差や質量分離による迷走ビームがイオン光学系に当たるときに生成される二次電子であるので、そのエネルギーは0～数十eV付近である。そのため、減速レンズ中に負電位の電極を設けることにより、図1.6に示すように、ビーム中の電子は減速電界 (電子に対しては加速電界) の手前で除かれる。④の問題は、正イオンの減速に関しては一般に起こらない、なぜならば正イオンの減速電界は基板上で発生した二次電子に対して抑制電界になるからである。しかし、基板の手前に同電位のビーム形成電極 (Wehnelt電極) を設けるので、ターゲットへ入射するイオン電流を正確に測定するためには何らかの工夫が必要である。また、図1.4に示すように弱い磁界Bが加速レンズ部 (acceleration lens) および減速レンズ部に印加されている。これはレンズ内で発生する二次電子を抑えるためである。

Freemanらは以上の設計指針を基にして、イオンビームの減速系を製作した。図1.7に示すように、用途に応じてビーム形成電極の形状と減速レンズ部の軸を傾けることにより、減速ビームの集束の程度および高速中性粒子の除去が可能である。このような減速系によ

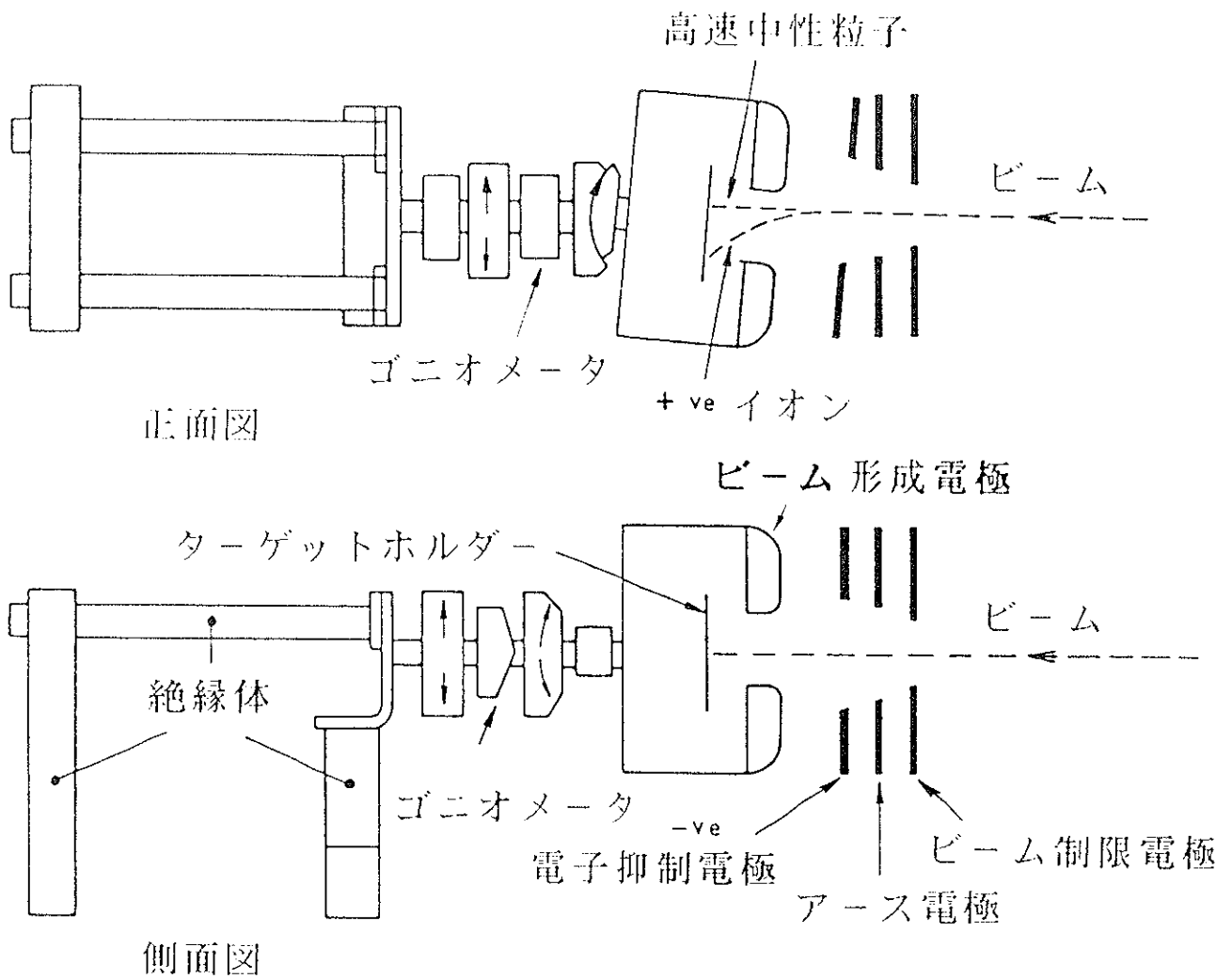
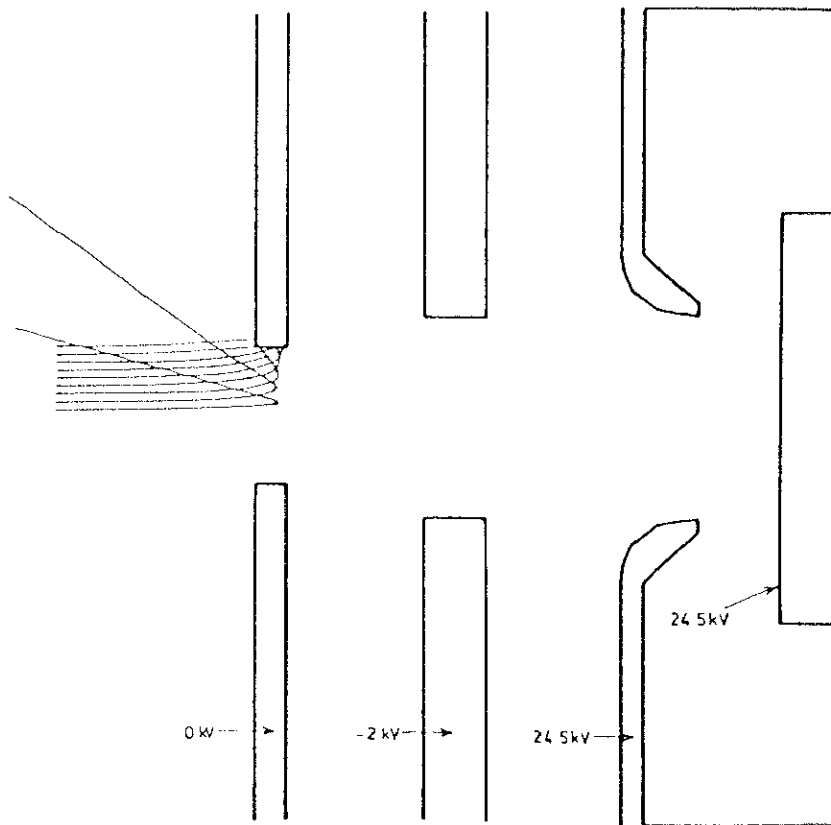


図1.5 イオンビームの減速と偏向を同時に行なうための方法



Dimensions in Arbitrary Units

Initial Electron Beam Energy = 100 eV

図1.6 ビーム中の電子を除くための方法

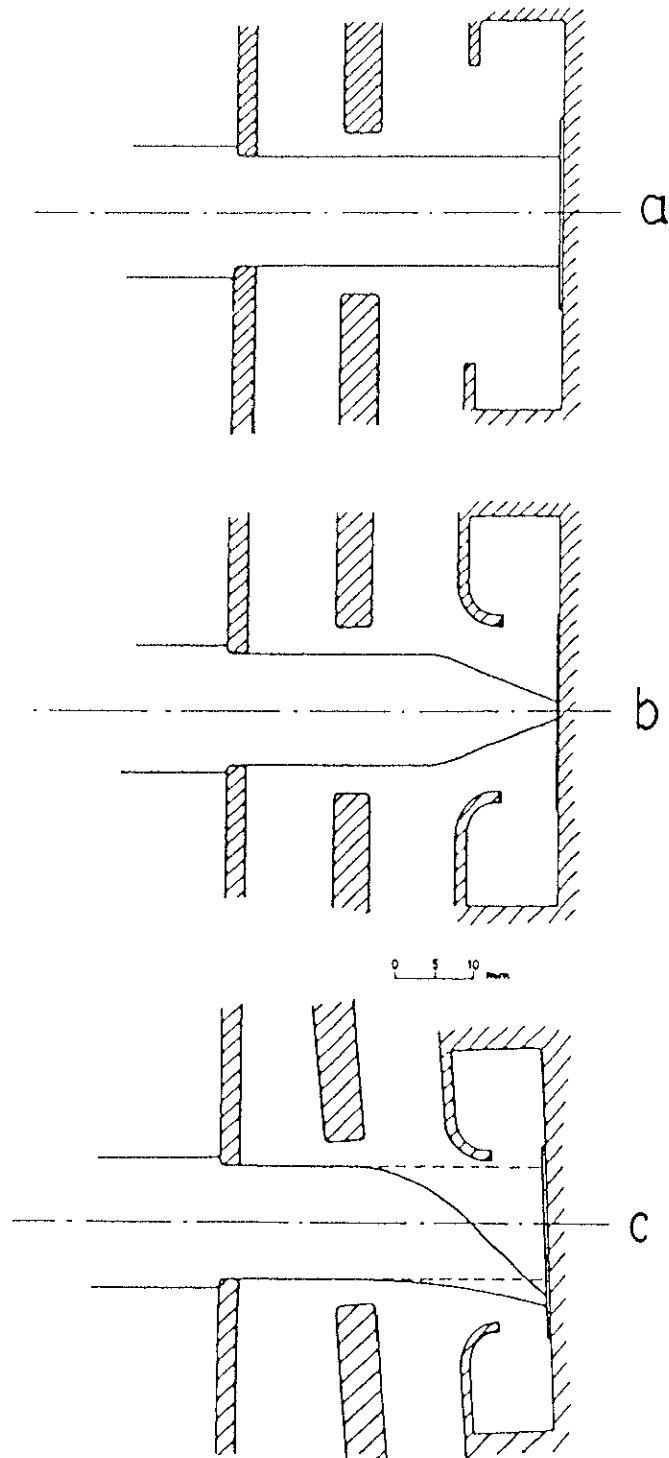


図1.7 減速ビームの集束及び高速中性粒子の除去を行なうための方法。(a)弱い集束、
(b)強い集束、(c)偏向を伴った強い集束

り、Freemanらは、10~1000eVの低エネルギーイオンビームを基板に供給できると報告している。

Freemanらの方法は比較的高いエネルギー（数十keV）のイオンビームを輸送した後に基板の直前で減速することにより、低エネルギーイオンビームを得るものである。これに対して、イオンの引き出しエネルギーを比較的低くし（数百~数千eV）、輸送することなく、引き出し直後に何段かのレンズを用いて低エネルギービームを得る方法はかなり以前からおこなわれており、その一例を図1.8に示す⁷⁾。この方法では純粋なイオンを得るための質量分離ができない。また、減速系の役割をするものを持っていないともいえる。さらに簡単な構成としては数keVでイオンを引き出し、せいぜい一段のレンズで集束し、直接基板上で減速する方法もある。図1.9はその一例を、また図1.10はその変形を示す⁸⁾。いずれにしてもこれらの方法はイオンの引き出しエネルギーが低いためイオンの収量を増やせない。しかし初期のイオンビームデポジションにはこれらの形式が利用された。

Freeman以降の減速系の設計は基本的に差異はない。以下に質量分離器を有したIBD装置の例をいくつか挙げる。図1.11はTsukizoeらのIBD装置を示す⁹⁾。この装置構成は、減速レンズ系に工夫がしてあり、除々に減速させ、減速によるビームの発散を押えながら最終的に低エネルギーで集束したビームを得ようというものである。図1.12はMenzigerが開発したIBD装置を示す¹⁰⁾。これも多段の減速電極を用いている。質量分離器はE×B型ウインフィルターを採用している。図1.13はThomasらのIBD装置を示す¹¹⁾。円筒形のレンズの中に基板を入れて、基板の位置を変えることにより、レンズ電界の浸み込みを変化させ、基板上でのビームの形状をコントロールしている。図1.14はYagiらのIBD装置を示す¹²⁾。質量分離後、偏向電極により、ビームに含まれている高速中性粒子を除き、電界、磁界両レンズを用いて、減速後のビームの発散を抑えている。基板の手前には二次電子抑制電極を設けている。図1.15はTokuyamaらのIBD装置を示す¹³⁾。特徴として基板をアース電位側にしているため、基板のin-situ観測が容易におこなえる。また、減速系には図1.16に示すようなE×B型の減速レンズを設けている。イオンビームと垂直になるように、300G程度の磁界を印加し、ビーム中に含まれている電子を除去している。図1.17はIshikawaらの減速器を示す¹⁴⁾。これは、空間電荷によるビームの広がりを補正する電極形状になっている。図1.18は宮村らの減速器とビーム軌道を示す¹⁵⁾。特に、斜めから入射するビームに言及しており、基板前面の減速電界の歪みのためにイオンビームは押し戻されて、基板に到達できなくなるので、100eVでは許される入射角は8°以内であると

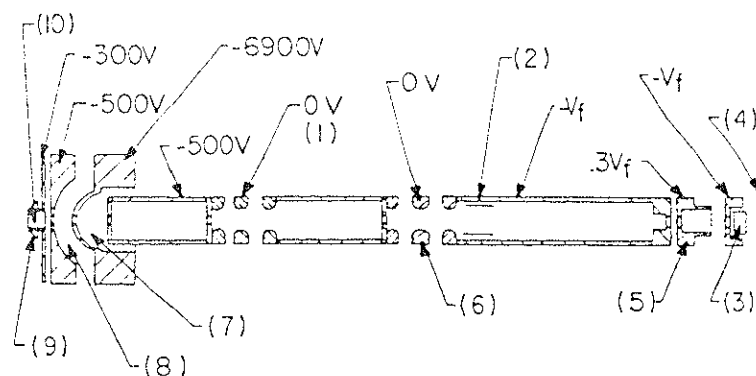


図1.8 輸送することなく、引き出し直後に何段かのレンズを用いて低エネルギービームを得る方法。(1)集束レンズ、(2)軸合わせ電極、(3)偏向電極板、(4)試料台、(5)対物レンズ、(6)最終エネルギー用レンズ、(7)減速領域、(8)加速領域、(9)引出電極、(10)レンズ領域

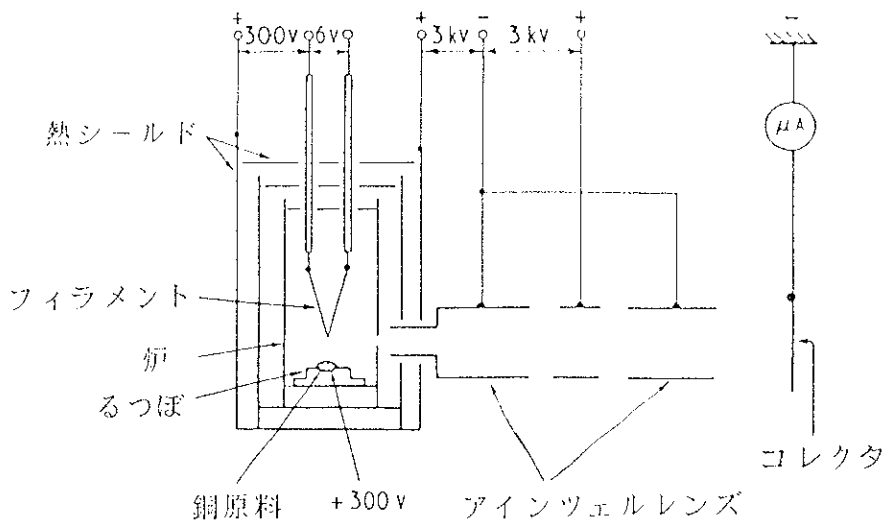


図1.9 一段のレンズで集束し、直接基板上で減速する方法

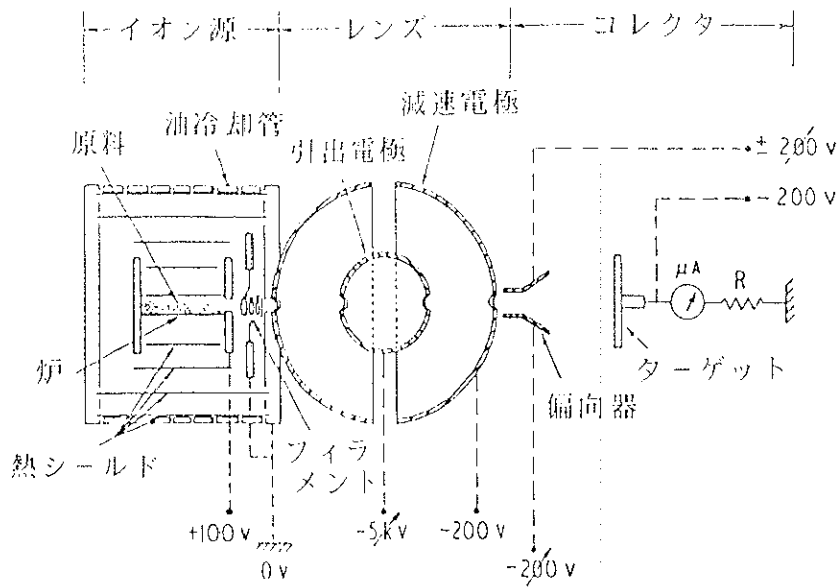


図1.10 図1.9の変形

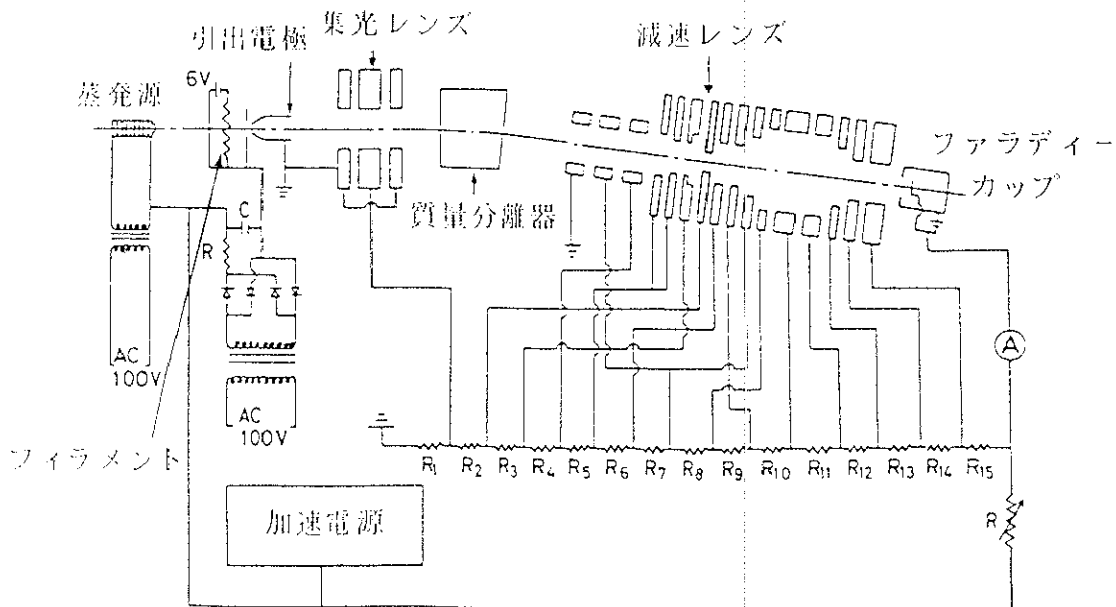


図1.11 TsukizoeらのIBD装置

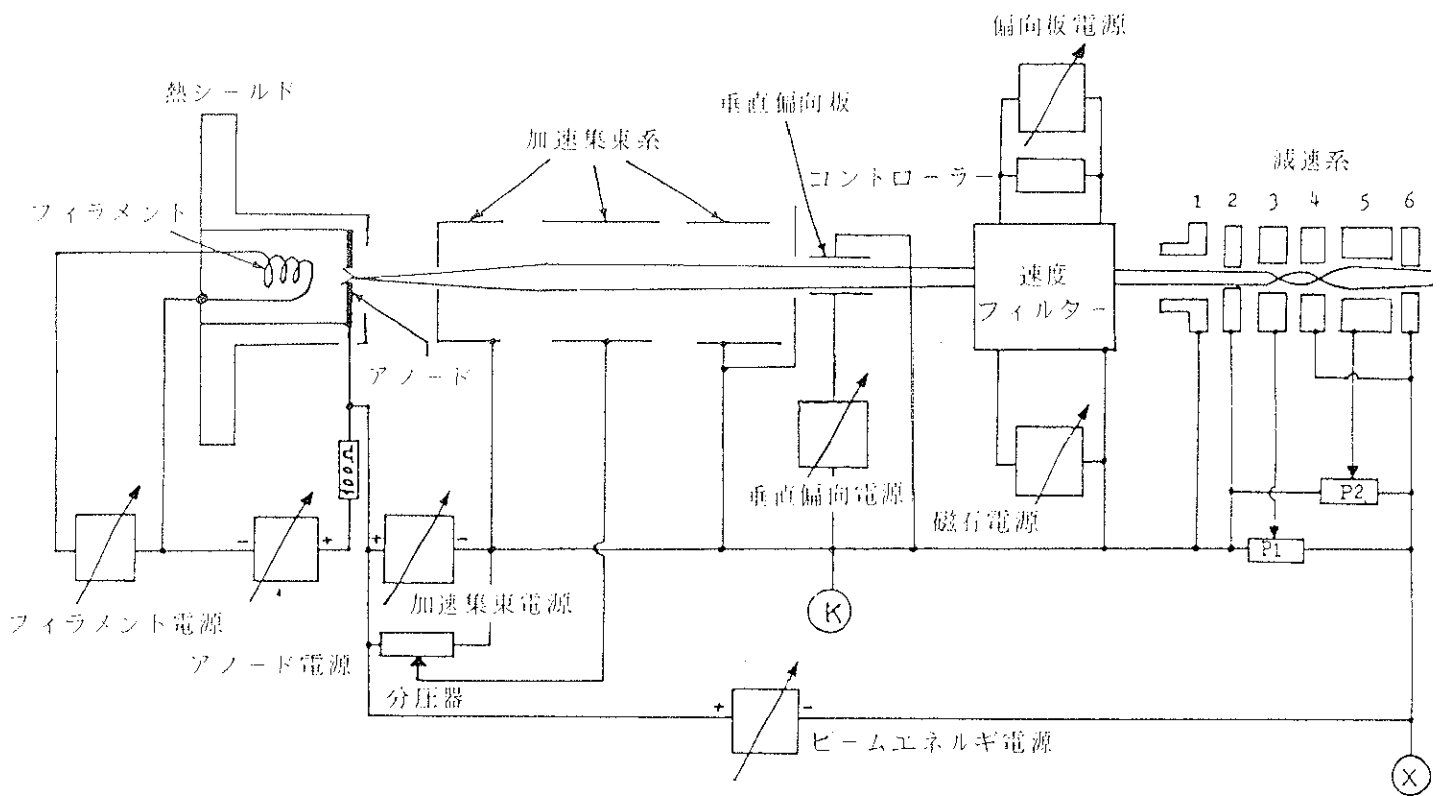


図1.12 Menzingerが開発したIBD装置

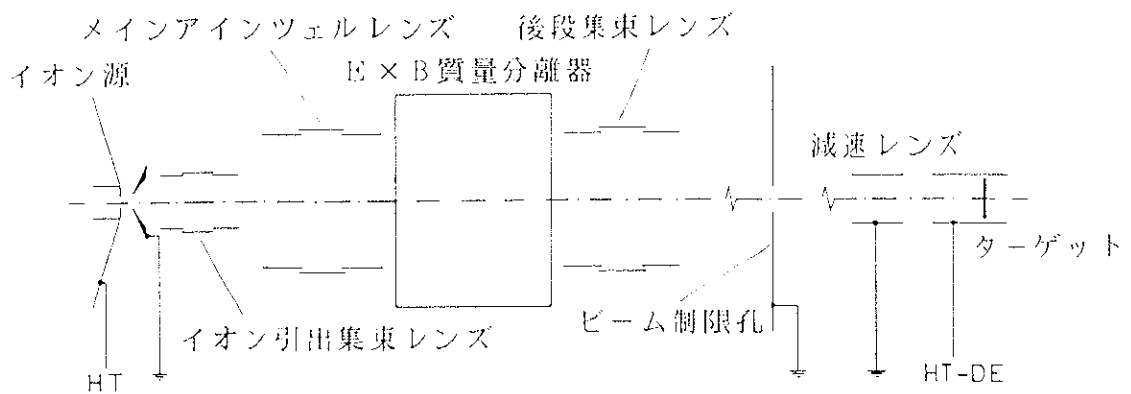


図1.13 ThomasらのIBD装置

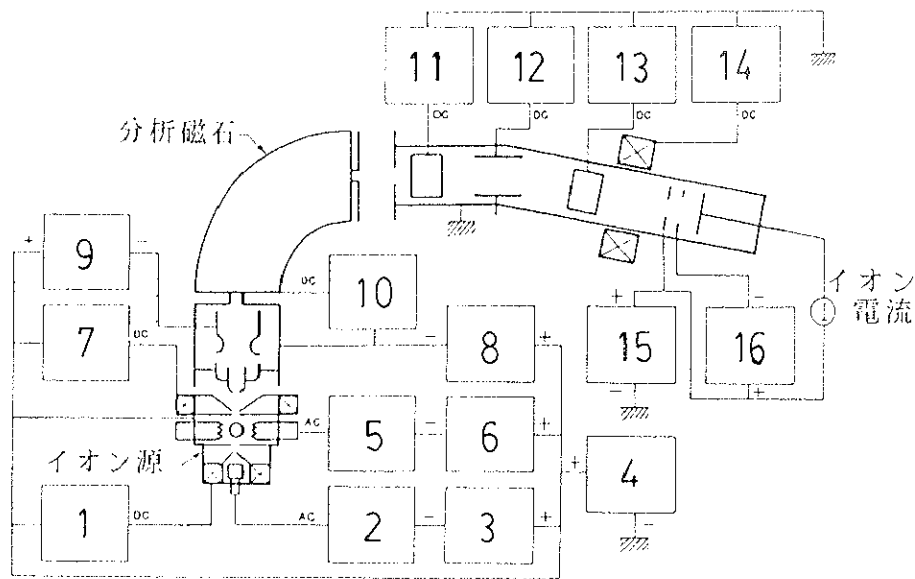


図1.14 YagiらのIBD装置。(1)イオン源用磁石電源、(2)イオン源用フィラメント電源、(3)アーク電源、(4)加速電源、(5)電子衝撃フィラメント電源、(6)電子衝撃電源、(7)イオン化磁石電源、(8)引出電源、(9)ビーム集束電源、(10)分析磁石電源、(11)前段集束電源、(12)偏向電源、(13)後段集束電源、(14)磁界型集束電源、(15)減速電源、(16)電子抑制電源

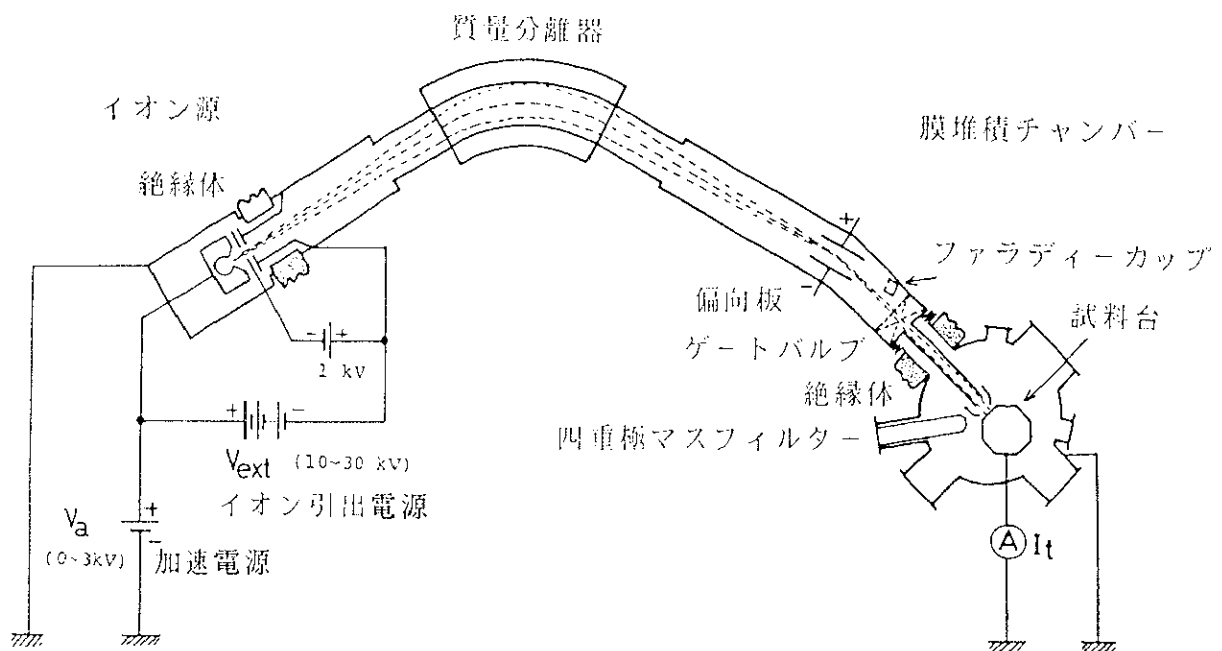


図1.15 TokuyamaらのIBD装置

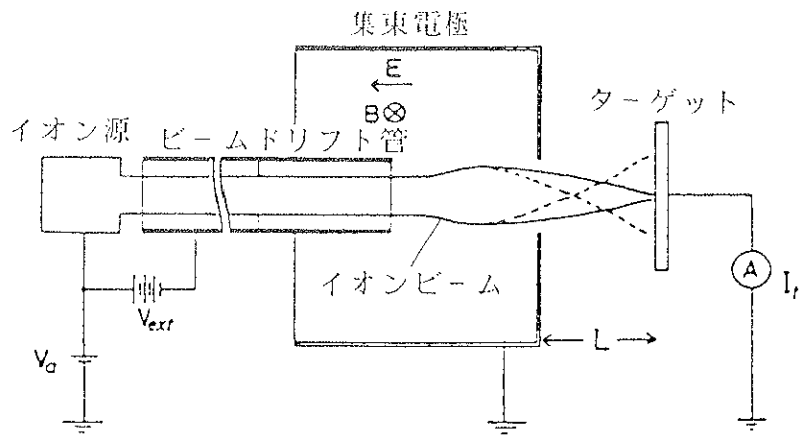


図1.16 E × B型の減速レンズ

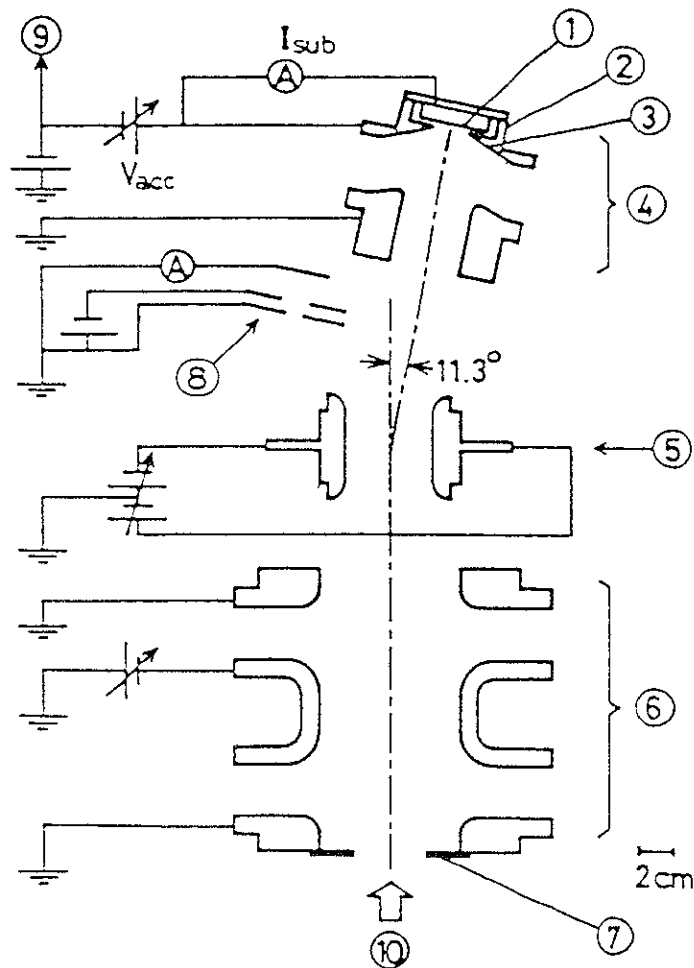


図1.17 Ishikawaらの減速器。(1)試料、(2)試料台、(3)補助電極、(4)減速電極、(5)第二アインシェルレンズ、(7)ビーム制限孔、(8)ファラデーカップ付きシャッター、(9)イオン源のターゲット電極電位、(10)質量分離後の負イオンビーム

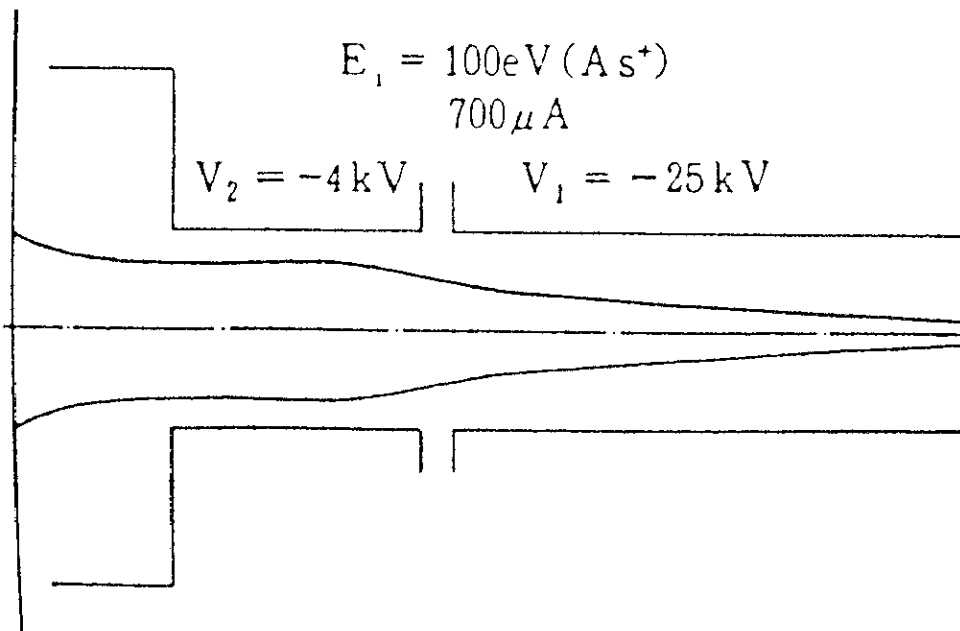


図1.18 宮村らの減速器とビーム軌道

している。

以上、イオンビーム減速器について述べてきたが、現在のところ、複数イオンビームの直接堆積による化合物の合成は報告されていない。したがって、イオンビームによる化合物生成に必要な、二方向からのイオンビームを減速させて、同時に基板に照射する技術は確立されていないといえる。

1.2.3 イオンビームによる膜形成

イオンビームデポジションは1965年にWolterによって初めて報告された¹⁶⁾。これは、低電圧アーク放電をターゲット金属に当て、そこから放出される金属の粒子とイオンをビームとして堆積させたもので、Ag、Cu、Cr膜の特性について報告している。また、1971年にAisenbergとChabotによって、付着力の非常に大きいダイヤモンド状のカーボン膜が報告されている¹⁷⁾。この方法では、イオン源は、アルゴンをサポートガスとしてカーボンの電極間にペニング放電を起こさせるタイプを用いており、イオン引き出し直後に基板を設けた直接堆積であるために、ビーム中にはカーボンおよびアルゴンのイオンと中性粒子が含まれている。

これに対して、AmanoとLawsonは、高電圧でイオンを引き出し、質量分離を行わない必要なイオンのみを得て、つぎにビームを必要なエネルギーまで減速する方式により、 Pb^+ と Mg^+ を用いたデポジションをおこなった^{18~20)}。この結果、イオンビームデポジションは不純物の含まれない膜の結晶性を制御してデポジットする潜在力があることを示した。また、イオンビームを用いて単結晶薄膜のエピタキシャル成長をおこなわせる技術も種々報告されている。ThomasらはSi基板上にAgやGeのエピタキシンをおこなっており²¹⁾、同じ装置でZalmとBackersはGeやSi基板上にSiのエピタキシンを報告している²²⁾。YagiらはGeやSi基板上にGeのエピタキシンをおこなっている²³⁾。宮村らはGaAsなどのⅢ-Ⅴ族化合物半導体のエピタキシャル成長において、Ⅲ族元素を従来のMBE法によって基板に供給し、Ⅴ族元素を質量分離されたイオンビームにより投入する方式を提案している¹⁵⁾。また、石川は炭素負イオンビームによる炭素膜の形成をおこなっており、電気抵抗率、原子密度、および、熱伝導率がダイヤモンド結晶とグラファイトの特性の中間値を示すと報告している²²⁾。すなわちこれらの報告は、比較的lowエネルギー（数十～数百eV）のイオンビームを利用することにより、通常の方法では得られない構造や組成の膜が得られたり、また、通常の単

結晶成長温度より低い温度でエピタキシャル成長させられることを示している。

III-V族以外の化合物については、AisenbergとChabotが酸素をサポートガスとして、アルミ電極からの一次イオンビームデポジションによって Al_2O_3 膜の形成を試みているが、イオン源の動作不安定などが原因で、特性評価ができるような膜が得られていない²³⁾。また、Van den BergとArmonrはアルゴンをサポートガスとしたデュオプラズマトロンイオン源の中にZnSのパウダーからの蒸発物を供給し、アルゴンイオンビームの中にZnSのイオンを混入させる方法により、ZnS膜を得ている²⁴⁾。しかしながら、この方法では、従来法で得られた膜と同等の光学特性は得られているが、それ以上の膜を得るには至っていないと報告している。すなわち、イオンビームの一次デポジションによる化合物の形成はまだ十分に研究されていないといえる。しかしながら、将来有益な人工結晶が得られる工法には、明確にされたパラメーターを十分に制御して扱える、イオンビームデポジションが有効であり、特に、化合物の形成には威力を発揮するであろうと考えられる。そこで、イオンビームによる化合物合成に関する基礎データの蓄積、および、新しい工法の確立が必要である。

1.3 本研究の目的と意義

本研究は

- (1) 高融点金属イオン源を開発し、
- (2) 二種類のイオンビームを同時に、低エネルギーで基板に照射する技術を確立し、
- (3) イオンビームによる化合物の生成過程と特性を明らかにすること、

を目的とする。

本研究の意義は、イオンビームによる自由度の高い薄膜形成を実現するうえでの諸問題のうち、これまで大電流化、安定生成が困難であった各種の金属イオン源の研究開発、特に、今後の電子デバイスに不可欠となる高融点金属が手軽に得られるイオン源を開発し、それを用いた複合イオンビーム法により、堆積物質の運動エネルギーと供給量が精密に制御可能な技術を開発することにより、VLSIや高機能薄膜デバイスの研究開発に新たな指針を与えることにある。

1.4 本論文の構成と概要

本論文は、本章を含めて5章から構成されている。第2章では新しく開発した金属イオン源について述べる。第3章ではイオンビーム膜堆積装置の設計指針と性能、さらに、第4章ではその装置を用いたイオンビームによる膜形成について述べ、最後に第5章で結論を述べる。

第2章においては、高融点金属から安定に高密度のイオンビームが得られるように新しく開発したPIG構造小型マイクロ波金属イオン源について述べる。マイクロ波放電とPIG放電を組み合わせたスパッタ型のイオン源を開発した。その構造と動作原理を説明し、放電状態とイオンビーム特性に関する実験結果を示す。

第3章ではイオンビーム膜堆積装置について述べる。イオンビーム装置を設計する上で、イオンビーム軌道解析によって詳細設計をおこなうことが良策である。イオンビーム軌道の計算機シミュレーションを利用して、E×B質量分離器が付いたイオンビーム膜堆積装置を製作した。また、従来、困難とされていた二方向からのビームの同時照射も、新しい概念の減速電極系を開発することにより可能になった。そこで、個々のイオンビーム輸送系の設計指針を明らかにし、系全体の性能を示す。

第4章では膜形成について述べる。シングルイオンビームおよびダブルイオンビームによる酸化物・窒化物薄膜の作成をおこなった。ダブルイオンビーム法により、化学量論的組成を満足した薄膜を形成することができた。また、イオンエネルギーと膜組成の関係についても明らかにする。

最後に、第5章で、本研究で得られた結果を総括する。

第1章 参考文献

- 1) S. Seki, T. Unagami, O. Kogure, and B. Tsujiyama, *J. Vac. Sci. Technol.*, **A 5**, 1771 (1987).
- 2) 菅田栄治編集、『電子・イオンビームハンドブック第2版』日刊工業新聞社 (1986) p.564.
- 3) B. Gavin, *IEEE Trans. Nucl. Sci.*, **NS-23**, 2, 1008 (1976).
- 4) K. J. Hill and R. S. Nelson, *Nucl. Instr. Methods*, **38**, 15 (1965).
- 5) J. H. Freeman, *Nucl. Instr. Methods*, **22**, 306 (1963).
- 6) J. H. Freeman, W. Temple, D. Beanland, and G. A. Gard, *Nucl. Instr. Methods*, **135**, 1 (1976).
- 7) R. B. Fair, *J. Appl. Phys.*, **42**, 3176 (1971).
- 8) B. A. Probyn, *Brit. J. Appl. Phys. (J. Phys. D)*, Ser. 2, Vol. 1, 457 (1968).
- 9) T. Tsukizoe, T. Nakai, and N. Ohmae, *J. Appl. Phys.*, **48**, 4770 (1977).
- 10) コルترون社 “コルترونイオンビームキット” カタログ.
- 11) G. E. Thomas, L. J. Beckers, J. J. Vrakking, and B. R. Dekoning, *J. Cryst. Growth*, **56**, 557 (1982).
- 12) K. Yagi, S. Tamura, and T. Tokuyama, *Jap. J. Appl. Phys.*, **16**, 245 (1977).
- 13) T. Tokuyama, K. Yagi, K. Miyake, M. Tamura, N. Natsuaki, and S. Tachi, *Nucl. Instr. Methods*, **182/183**, 241 (1981).
- 14) J. Ishikawa, Y. Takeiri, and T. Takagi, *Rev. Sci. Instrum.*, **57**, 1512 (1986).
- 15) 宮村賢郎、清水三朗、小宮宗治、機能材料、1984年2月号、p26.
- 16) A. R. Wolter, *Proc. Microelectron Symp.*, 4th, IEEE, st. Louis, p. 2A-1 (1965).
- 17) S. Aisenberg and R. Chabot, *L. Appl. Phys.* **42**, 2953 (1971).
- 18) J. Amano, P. Bryce, and R. P. W. Lawson, *J. Vac. Sci. Technol.*, **13**, 591 (1976).
- 19) J. Amano and R. P. W. Lawson, *J. Vac. Sci. Technol.*, **14**, 831 (1977).
- 20) J. Amano and R. P. W. Lawson, *J. Vac. Sci. Technol.*, **14**, 836 (1977).
- 21) P. C. Zalm and L. J. Beckers, *Appl. Phys. Lett.*, **41**, 167 (1982).
- 22) 石川順三、真空、**31**, 889 (1988).

- 23) S. Aisenberg and R. Chabot, *AFCRL-TR-73-0176*, Air Force Cambridge Res. Lab., Bedford, Massachusetts (1973).
- 24) J. A. Van den Berg and D. G. Armonr, *Vacuum*, **27**, 27 (1977).

第2章 金属イオン源

従来の高融点金属イオン源はほとんどが加速器を対象として開発されてきたため、大型でパルス動作に限られていた。一方、加速器用以外でも、イオンビームによる自由度の高い膜形成や表面改質の要望が高まるにしたがって、従来の物性応用のイオン源^{1)~3)}では得ることが難しい高融点元素のイオンも要求されるようになってきた。例えば、イオン注入による表面改質の分野で、タンタルイオンビームによるFe系合金の硬化処理が必要とされているが⁴⁾、改質に十分な量のタンタルイオンが安定に得られるイオン源がないのが現状である。その要求を満たす一つの方法として、目的とした元素を含んだ気体の化合物を用いたイオン源が考えられる。しかし、元素の種類によっては都合の良い化合物が無いことも多く、また気体の化合物であっても人体にとって猛毒の場合があり、扱いが難しい物質であることが多い。さらに化合物を用いると、得られるイオンビームの中には目的とするイオン以外の成分が多く含まれていて、必要なイオンはイオン源の全出力ビームのわずか数%にすぎないといったこともしばしば起こる⁵⁾。

したがって、十分なイオンビーム量を得るためには、目的とする元素の単体からイオンが得られることが望ましい。しかも、高融点金属の場合は、炉材料の制限から、蒸発物を利用することが困難なため、スパッタリング法が有利である。これまでに、高融点金属からイオンが得られるように工夫されたスパッタ型イオン源がいくつか報告されているが^{6)~7)}、スパッタ物による陰極汚染など、技術的制約のために膜形成や表面改質に十分な量のイオンビームは得られていない。

新しく開発したイオン源は、PIG放電とマイクロ波放電を組み合わせることにより、電子を供給するための陰極をなくしたスパッタ型（PIG構造小型マイクロ波金属イオン源と名づける）である。また、両放電の長所を保ち、プラズマ密度とイオン閉じ込め領域をコントロールすることにより、高融点金属ターゲットから効率よくイオンが得られる。

2.1 PIG構造小型マイクロ波金属イオン源の構造

図2.1はPIG構造小型マイクロ波金属イオン源の構造を示す。イオン源全体の大きさは、長さ80mm、直径60mmである。プラズマ生成室内の寸法は、実質的な長さ12mm、直径26mmである。永久磁石⑩は外径60mm、内径50mm、高さ15mmのドーナツ形で、

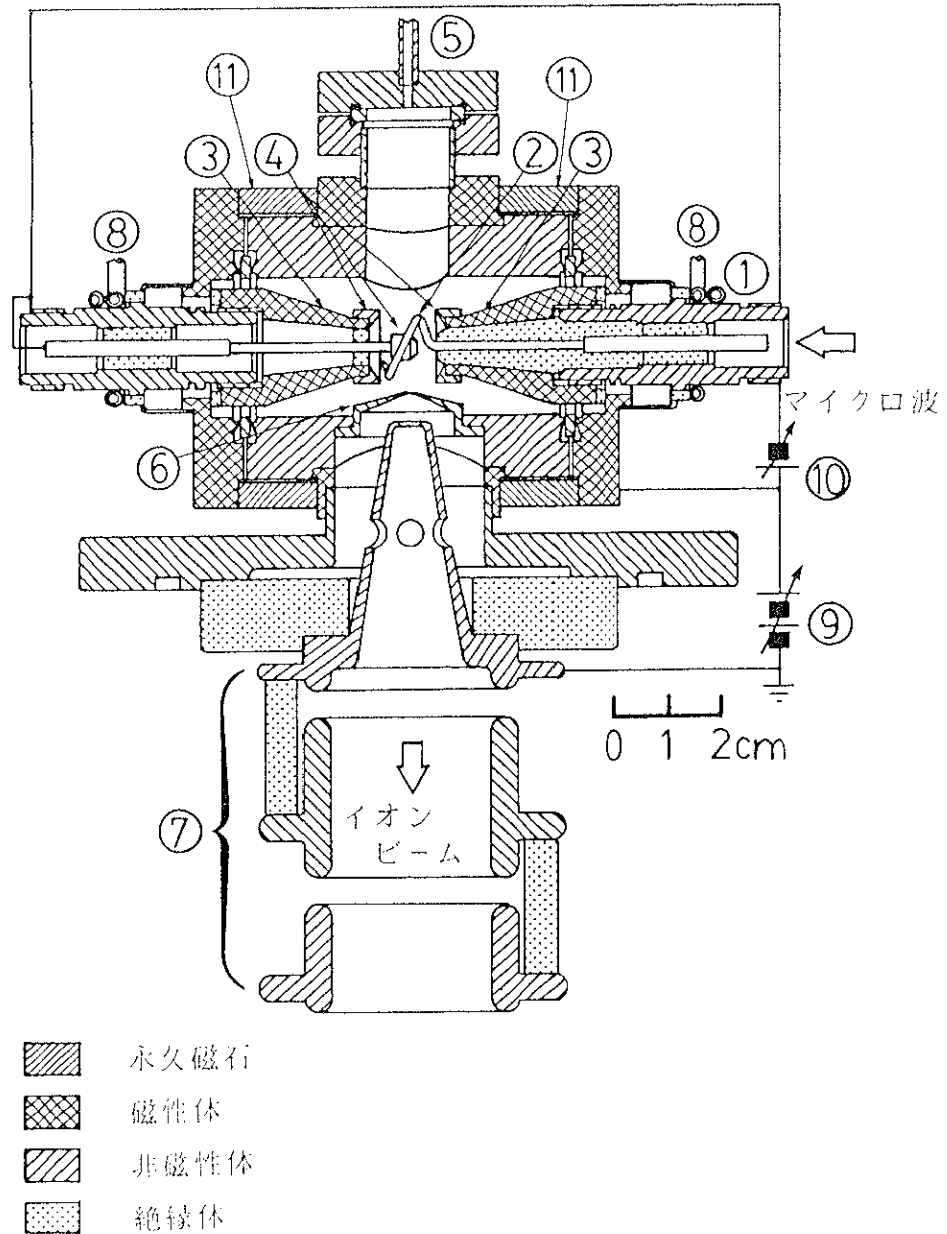


図2.1 P I G構造小型マイクロ波金属イオン源の構造。(1)同軸コネクタ、(2)アンテナ、
 (3)磁極部、(4)スパッタリングターゲット、(5)ガス導入口、(6)イオン引き出し
 用の孔、(7)イオン引き出し集束レンズ、(8)冷却パイプ、(9)加速電源、(10)スパッ
 タリング電源、(11)永久磁石

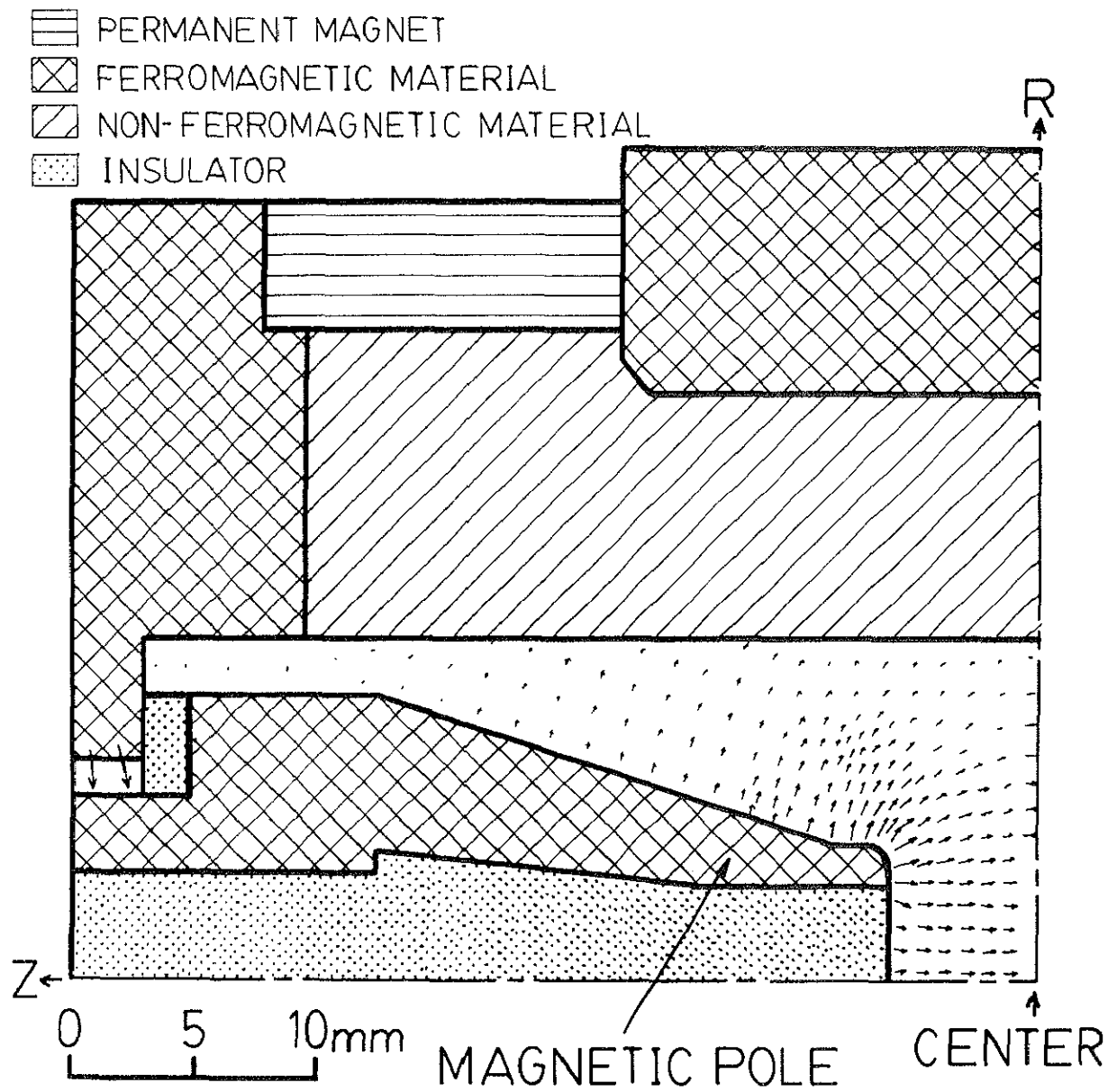


図2.2 イオン源内の1/4断面部の磁束密度のコンピューターシミュレーション結果

Co-Smでできており、残留磁束密度は10.1kGで、軸方向に磁化されている。本体は外径50mm、内径26mm、長さ60mmの非磁性体で側面中央にイオン引き出し用の孔⑥が開けてあり、2個の永久磁石とその間にイオン引き出し用の孔が開いた磁性体の継鉄が外周にはめである。本体の両端には磁性体でできたフランジがあり、銅ガスケットにより真空が保たれている。両方のフランジにはプラズマ生成室へ突き出た磁性体の磁極部③が取り付けられており、フランジと磁極部は磁気的には連続しているが、電気的には厚さ2mmの窒化ボロン（絶縁物）によって絶縁されている。この構造により、プラズマ生成室までの磁路が形成される。

図2.2はイオン源内の1/4断面部の磁束密度のコンピューターシミュレーション結果を示す。この構造では、磁極間の磁界が強くなるために、プラズマ閉じ込めが促進され、壁面と磁極側面との間にプラズマが漏れる可能性が少なくなる。図2.3は磁極間隔を変えた場合の空隙磁界強度の実測値を示す。磁極間隔を12~18mmに変えることにより、プラズマ生成室中央の磁界強度を2.2~1.3kGまで変化させることができる。磁極部には数百Vの電圧が印加されるので、プラズマ生成室近傍での異常放電を防止するために、先細り型になっている。この形状は、漏れ磁界がなるべく少なく、磁気ギャップで平行磁界が得られるように、コンピューターシミュレーションで最適形状を決定した。また、プラズマ生成室内でプラズマ密度の片寄りができないように、磁界を対称にしなければならないので、磁極の形状は左右対称になっている。

マイクロ波は同軸線を用いてイオン源に供給される。図2.4はイオン源へのマイクロ波導入系を示す。マイクロ波はマグネトロンの発振出力を用いており、定電圧電源でマグネトロンの電流を制御し、発振出力を可変にしてある。マイクロ波の波長は12.24cm、周波数は2.45GHzで、連続波であり、出力リップルは±5%以下である。定電圧電源の出力リップルをできるだけ小さくすることにより、マグネトロンの発振リップルも小さくなり、プラズマの生成が連続的になる（付録Aを参照のこと）。マイクロ波はサーキュレーターを經由してイオン源へ供給され、反射波はサーキュレーターで分離後、無反射終端に吸収される。本論文では、入力マイクロ波電力はサーキュレーターを通過後の全マイクロ波電力から反射波電力を差し引いた値と定義した。フランジの一方には、電気的に絶縁され、しかも真空が保てる同軸コネクタ①が付けてあり、磁極部に接続されている。また、磁極部は空洞でコネクタにアンテナ②が挿入でき、アンテナと磁極部の間には窒化ボロンが詰めてあり、インピーダンスの調整および磁極部内での放電防止ができるようになって

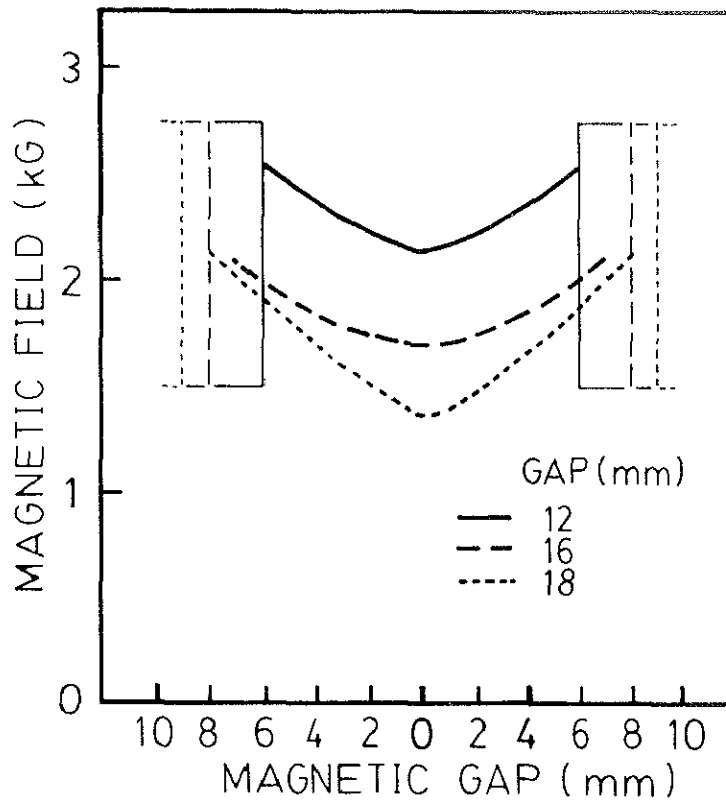


図2.3 磁極間隔を変えた場合の空隙磁界強度

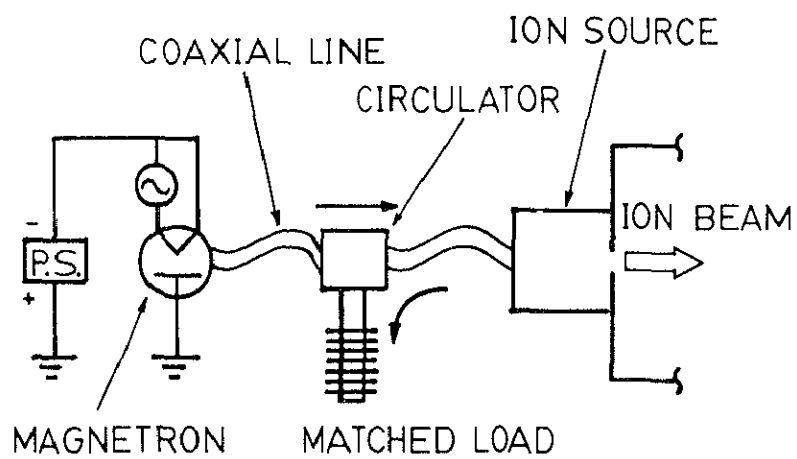


図2.4 イオン源へのマイクロ波導入系

ている。アンテナはヘリカル状であり。太さ $\phi 1.5\text{mm}$ 、ヘリカル部は $1/4$ 波長 (約 30mm) の長さである。 $1/4\lambda$ アンテナを用いることにより、イオン源の壁面とアンテナの先端とで定在波が立ったときに、アンテナの中心に強い電界が立ち、中央にプラズマ密度が高い所ができると考えられる (付録 B を参照のこと)。アンテナの長さに関しては、 $20\sim 30\text{mm}$ の間ではイオンビーム量に変化がなかった。アンテナの先端を鋭利にして、プラズマ生成室の側壁との間に高電圧がかかるようにし、トリガ放電が起こるようにしてある。この構造により、マイクロ波は同軸コネクタを経て、アンテナによってプラズマ生成室に放射される。

イオン源内のプラズマから、高電界によりイオンを効率よく引き出すには電極の最適化が必要である。本体のイオン引き出し孔に、イオン引き出し口が開けられた非磁性体のキャップが詰め込めるようにしてあり、このキャップの高さ、および引き出し口の径を変えることによりイオン引き出しの最適化ができる。イオン引き出し電極は、引き出し口に対向する所にイオン通過孔が開けてあり、イオン源本体とはマコール (絶縁物) によって電氣的に絶縁されており、十分なイオン引き出し電圧 (最大 30kV) を印加することができる。また、イオン引き出し部の真空度をよくするために、イオン引き出し電極には 4 個の孔が開けてある。

2.2 P I G 構造小型マイクロ波金属イオン源の動作原理

P I G 構造小型マイクロ波金属イオン源はマイクロ波放電と P I G (Penning ionization gauge) 放電を複合したスパッタ型イオン源である。アルゴン等の放電維持用ガスをガス導入口⑤から供給し、プラズマ生成室のガス圧力を $10^{-3}\sim 10^{-2}\text{Torr}$ にすると有磁場のマイクロ波放電が起こる。この放電は安定した連続放電であり、低ガス圧力 ($10^{-4}\sim 10^{-3}\text{Torr}$) でも磁極間に高密度のプラズマ ($10^{11}\sim 10^{12}\text{cm}^{-3}$) を生成することができる。

磁極をイオン源本体に対して数百 V の負電位にすると、イオン源本体の内壁は円筒型陽極となり、その両端の磁極が陰極となる。円筒型陽極の軸方向に電子のラーマー半径が陽極半径より小さくなるような磁界が印加されている。マイクロ波放電により中心軸近くで発生した電子は磁場でらせん運動しながら気体分子と衝突を経て陰極に達しようとするが、陰極は電子の反射電極となるために、電子は磁極に達することなく往復運動を継続することになり、磁極間に捕捉 (trapping) される。捕捉状態にある電子はいつまでも磁極間で

α 作用（電界方向1 cmの間に電子1個が衝突により気体分子を電離する平均回数）を管むから気体の電離を大いに促進する。すなわち、電子がプラズマ生成室に直交電磁界で閉じ込められるPIG放電が磁極間に起こる。

スパッタ型イオン源では、スパッタリングターゲット④を有効に利用するためにスパッタ物がプラズマ中を通過し、イオン引き出し口の方向に飛ぶ構造にするのがよい。そこで、円柱ターゲット（ $\phi 5\text{ mm} \times \ell 5\text{ mm}$ ）を磁極中央に置いた。円柱ターゲットへのスパッタリング電圧導入は、ターゲットに付けた太さ $\phi 1.5\text{ mm}$ の線と同軸コネクタに挿入し、この中心軸からおこなった。また、スパッタ物の供給および磁極がスパッタされるのを防止するためのカバーとして、磁極の先端にも環状のスパッタリングターゲットを取り付けた。円柱および磁極ターゲット、それに異常放電を防止するためにアンテナもすべて同じスパッタ電位にした。スパッタリングによるイオン源の加熱を防ぐために、コネクタの回りには水冷管を巻き、冷却効果をよくするために磁極およびコネクタに窒化ボロンを詰めた。

スパッタリングが効率よくおこなわれるためには、高密度のイオンがターゲットを叩くことが必要である。そこで、磁極中央での磁場強度を1.4kGにすれば、放電維持用のアルゴンイオンのラーマー半径は1 mmとなりプラズマ生成室内に捕捉され、磁界と電界の作用でターゲットを有効にスパッタする。これに対して、スパッタ物、たとえばタンタルイオンは、スパッタ粒子のエネルギーを考慮すると⁹⁾ラーマー半径は20 mmとなる。すなわち、径方向（磁界に垂直な方向）にイオンを引き出す場合は、アルゴンイオンは引き出されにくく、回転半径（ラーマー半径）がプラズマ生成室の径よりも大きい、タンタルイオンは捕捉されないのでアルゴンイオンに比べ効率よく引き出される。

異常放電防止のためにアンテナをスパッタ電位にしたが、この状態ではアンテナが積極的にスパッタされるので、アンテナの寿命が短くなる。また、スパッタ物がランダム方向に飛来するので、イオン源内部の汚れも激しく、動作が不安定になり易い。すなわち、スパッタリングによるアンテナのエッチング（etching）でイオン源の寿命が決まるので、アンテナはスパッタされにくい位置に持ってくればよい。アンテナをプラズマ密度が低い所に置くために、アンテナのヘリカル部の径を磁極の先端の径よりも大きくし、なるべくプラズマコラムの外側にアンテナが位置するようにした。また、アンテナが円柱ターゲットを取り囲むようにした。このようなアンテナ形状にすることにより、プラズマ表面の低電子密度領域で波動加熱がおこなわれるため、より高密度のプラズマでターゲットを覆うことができる⁹⁾。しかし、アンテナはエッチングされていくので、 $\phi 1.5\text{ mm}$ のアンテナ

であれば、イオン源の寿命は約8時間である。そのために、動作中でもアンテナは細くなって行くが、絶縁物と接しているアンテナの根元はスパッタリングでテーパーになっているので、徐々に径が細くなる形状になっており、 $\phi 0.5\text{mm}$ になるまでは、アンテナによってマイクロ波は十分にプラズマ生成室に放射され、イオンビーム量には変化はない（付録C.1を参照のこと）。

2.3 低融点用PIG構造小型マイクロ波金属イオン源

図2.1のイオン源で、融点が 2500°C 以上の金属 (Ta^+ 、 W^+ 、 Mo^+) のイオンビームは手軽に得ることができる。しかし、この方式では、低電力で効率よく高密度プラズマが生成されるため、上記の金属よりも融点が高いチタンの場合は過剰イオンの衝撃により溶けるという問題があった。

そこで、融点が 1670°C のTiのイオンビームが得られるようにするためには、ターゲットおよびマイクロ波放射用のアンテナの冷却効率をよりよくできるような冷却方式を工夫する必要がある。イオン源の構造上、両側のコネクタを水冷するのがよい。高融点金属用のイオン源の構造（図2.1）では、コネクタはスパッタリング電圧が印加できるように、絶縁体でフランジと絶縁されており、絶縁体の上部は1/8インチのパイプで水冷されている。しかしながらこのような構造では、冷却効率をよくするためにパイプとコネクタの接触面積を大きくすると、絶縁体で沿面放電が多発するために電圧が印加できない。図2.5は低融点金属用のイオン源の構造を示す。コネクタが付いたフランジとイオン源本体を絶縁体Bで絶縁し、またフランジ取り付け用のネジはフランジと絶縁体Cで絶縁されている。コネクタは水冷ジャケットで全体が冷却されており、コネクタ内は熱伝導のよい絶縁体である窒化ボロンが詰めてあり、ターゲットとアンテナを効率よく冷却できる。

しかしながら、この構造では磁気回路のフランジと永久磁石との間に絶縁物があるために磁気ギャップの磁場が図2.1よりも約20%低下する。そのため、このイオン源ではイオン量は低下するので、チタン等の低融点金属用として使用した。これらの工夫により、図2.5のイオン源では、チタンのアンテナとターゲットを用いた場合、マイクロ波電力37WとPIG放電電圧40Wを供給しても、チタンが溶けることなく安定に Ti^+ イオンビームが得られることが確認できた。

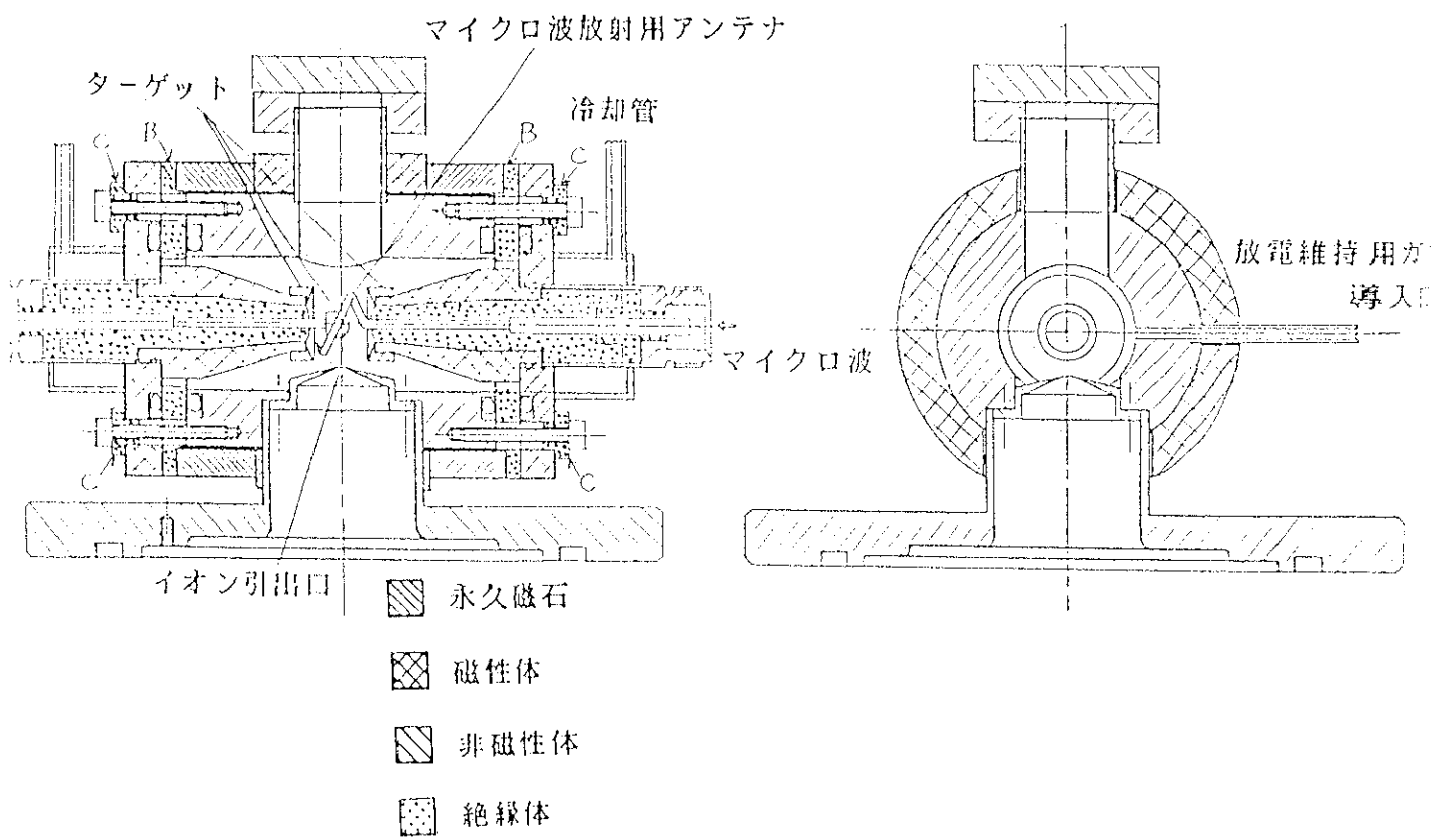


図2.5 低融点金属用のイオン源の構造

2.4 実験結果と考察

2.4.1 質量スペクトル

イオン源の性能を調べるために質量スペクトルの測定をおこなった。図2.6はイオン源テストスタンドの構成を示す。この装置はテスト用イオン源、質量分離器、それにイオン電流検出用のファラデーカップで構成されている。テスト用イオン源はPIG構造小型マイクロ波金属イオン源を用いた。質量分離器は扇形磁石型を採用し、偏向角 64° 、回転半径500mm、磁気ギャップ43mm、最大磁束密度6kGで、真空放電質量スペクトル分析装置の磁石(Mattauch-Herzog型)を改良した。また、質量分離器はアース電位であり、イオン源は正の高電圧で、最大30kVまで印加できる。真空チャンバーはイオン源チャンバー、分離チャンバー、それに測定チャンバーに分割されている。イオン源チャンバーと測定チャンバーはそれぞれ6インチのターボ分子ポンプで排気され、到達真空度はそれぞれ 4×10^{-7} Torrと 1×10^{-6} Torrである。また、分離チャンバーは6インチ油拡散ポンプで排気され、到達真空度は 2×10^{-6} Torrである。イオン輸送距離は約2mで、イオン源から質量分離器の入口までが500mm、質量分離器が1200mm、質量分離器の出口からファラデーカップまでが530mmである。本装置では、第一集束レンズをイオン源チャンバー内に、イオン引き出し孔から230mmのところに設け、ビーム制限孔は使用していない。レンズ電圧は、真ん中の電極に正電位で15kVまで印加でき、両側の電極はアース電位である。また、第二集束レンズは測定チャンバー内に、質量分離器の出口から114mmの位置に設けた。質量分離後ビームが変形するので、第二集束レンズの前にレンズ内径の半分の制限孔($\phi 40$ mm)を使用した。レンズ電圧は正電位で20kVまで印加できる。

図2.7はアルゴンガスを用いた時の質量スペクトルの一例を示す。この場合は、磁極のターゲットとアンテナはタンタルを用いた、磁気ギャップは14mmで、中央での磁場強度は0.9kGである。また、中央のターゲットは用いなかった。98%以上が1価のアルゴンイオンで、2価のアルゴンイオンは1~2%である。本イオン源はマイクロ波周波数の電子サイクロトロン共鳴(electron cyclotron resonance; 以下ECRと略す)条件よりも高い磁場でプラズマ生成をおこなっているため、1価イオンの割合が高いが、磁場をECR条件に合わせたり、プラズマ生成室内のガス圧力を低くしたりすると、2価イオンの比率が増加する傾向にある。また、図2.7よりイオン源内より出てくると考えられる不純物(タン

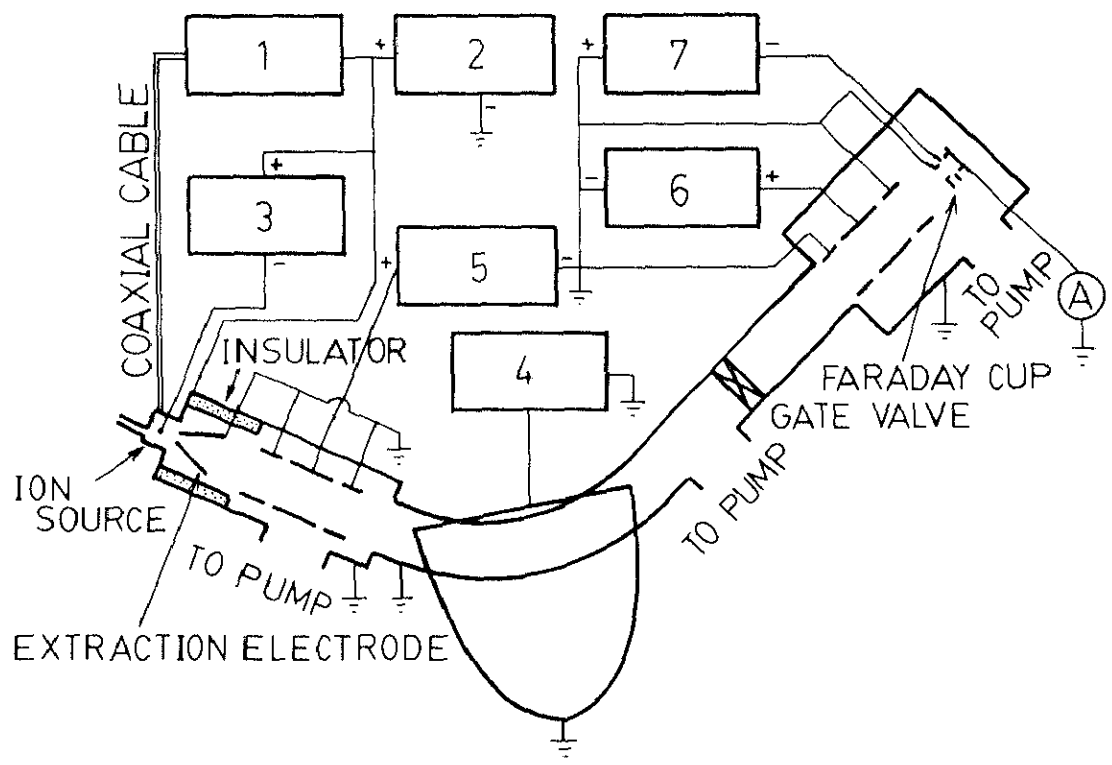


図2.6 イオン源テストスタンドの構成。(1)マイクロ波電源、(2)加速電源、(3)スパッタリング電源、(4)扇形磁石電源、(5)第一レンズ電源、(6)第二レンズ電源、(7)電子抑制電源

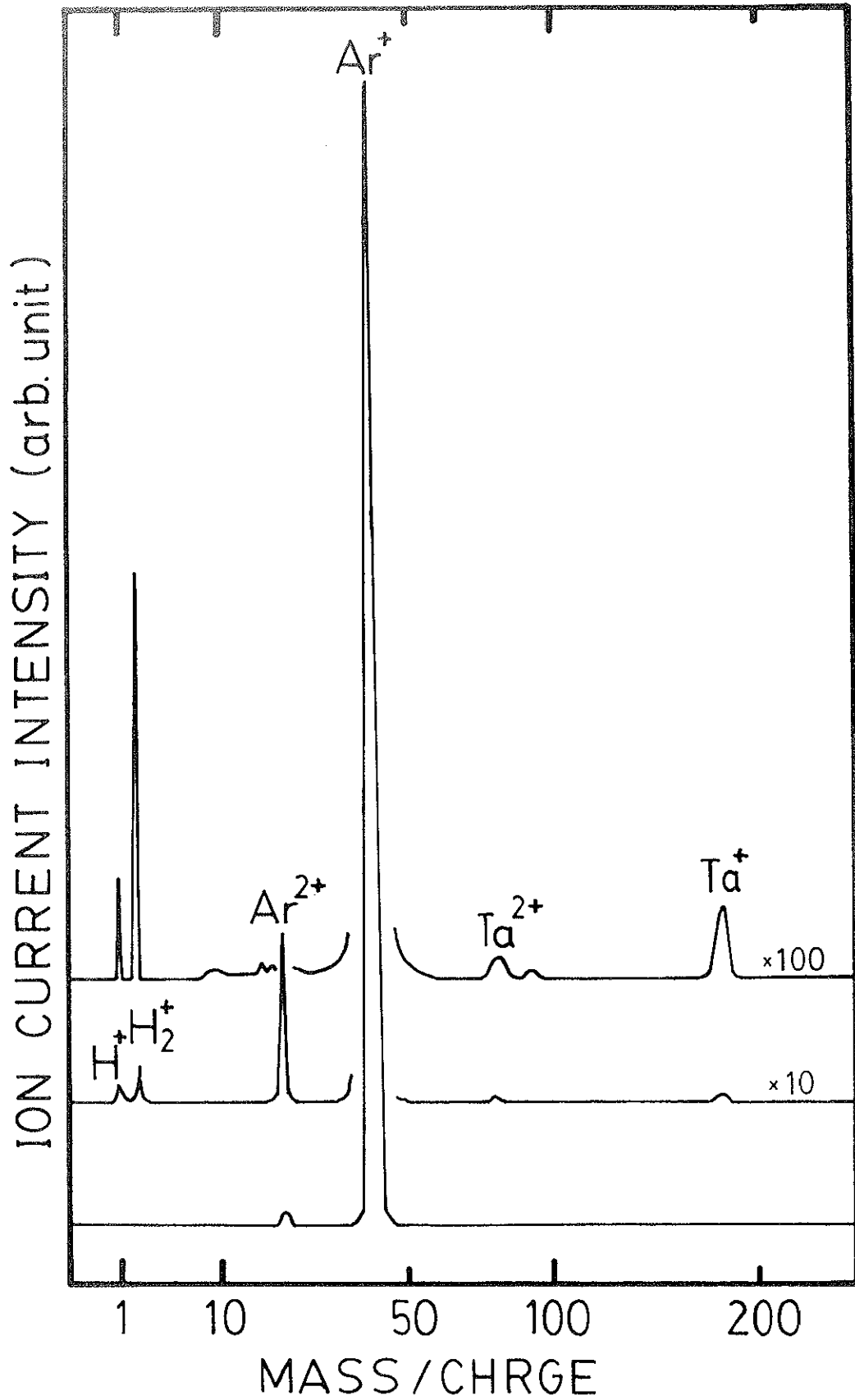


図2.7 アルゴンガスを用いた時の質量スペクトル。スパッタリング電圧は0V、中央ターゲットを用いていない場合

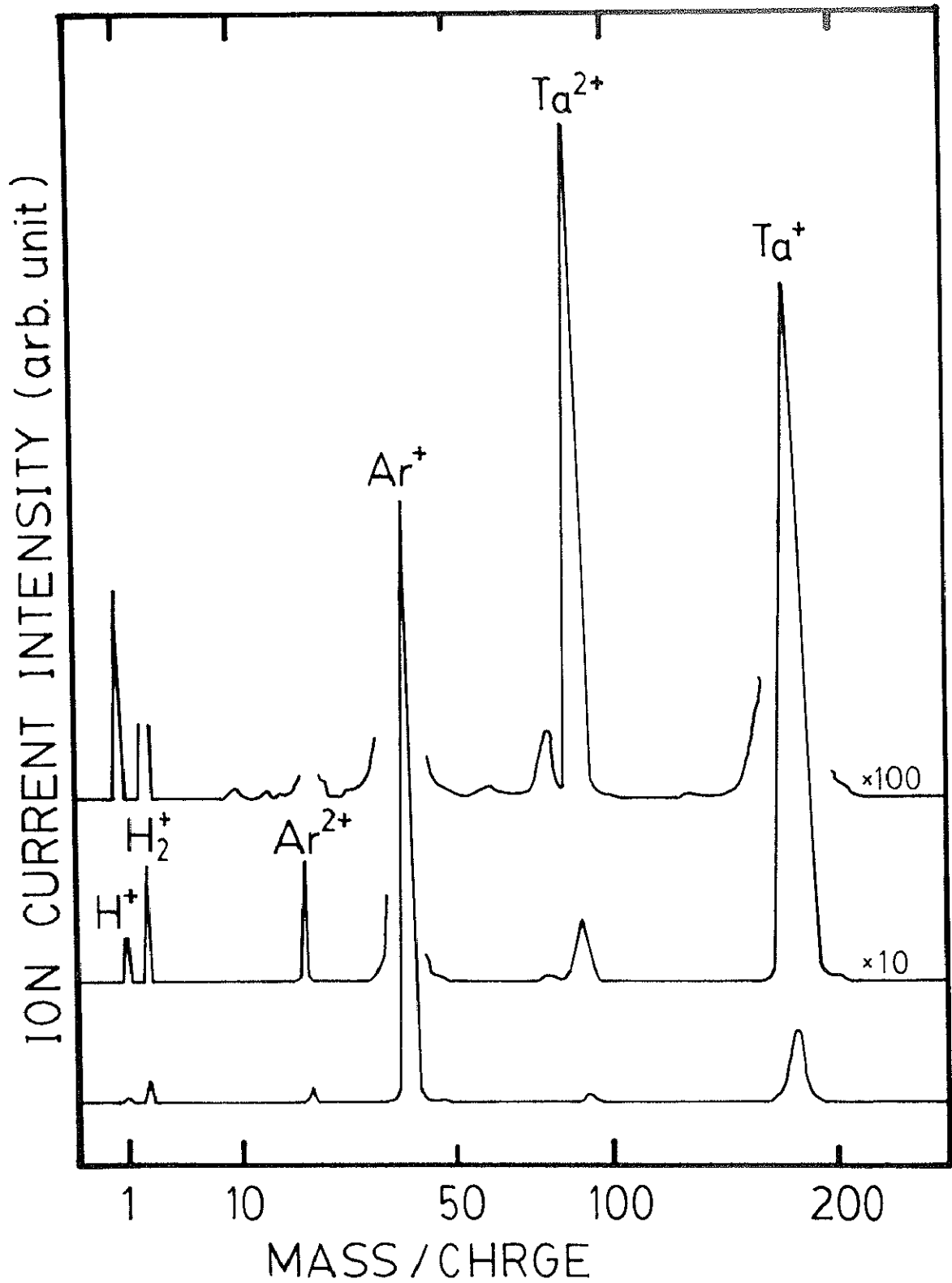


図2.8 タンタルイオン源として用いた時の質量スペクトル。スパッタリング電圧は
 -160V、中央ターゲットを用いた場合

タル、SLS成分、窒化ボロン)が少ないことがわかる。これは、放電室内にフィラメントや電極がないためである。

図2.8はタンタルイオン源として用いた場合の質量スペクトルを示す。この場合は、磁極とアンテナにスパッタリング電圧 -160V を印加した。図2.7の条件の時よりも、 Ar^+ イオン量は約半分に低下する。これは、PIG放電によって、ターゲットでアルゴンイオンが消滅するためである。このときの、 Ta^+/Ar^+ は11.5%である。

図2.9は磁気ギャップが14mmで、中央での磁界は1.4kGの時の Ta^+/Ar^+ のスパッタリング電圧依存性を示す。磁極および中央ターゲットとアンテナをスパッタリング電圧にし、そのときの質量スペクトルの強度から Ta^+ と Ar^+ の比率を求めた。図2.1に示した構造のイオン源を用いることにより、効率よく金属イオンが得られることがわかる。図の中の●印は、磁気ギャップは同じ14mmで、永久磁石の強度を小さくすることにより中央での磁場強度を0.9kGにしたときの比率である。この結果より、磁場強度を1.4kGにすることにより、アルゴンイオンがプラズマ生成室に捕獲され、スパッタリングに有効に利用されると考えられる。また、中央での磁場強度を0.9kGから1.4kGにすることにより、 Ta^+ のイオンビーム電流量も約2倍になる。また、磁極ターゲット、中央ターゲット、アンテナのそれぞれから得られる金属イオン量の比は約1 : 6 : 3であり、中央ターゲットの有効性がわかる。

2.4.2 放電特性

本イオン源はマイクロ波放電とPIG放電を組み合わせた構造になっているため、いろいろな制御パラメーターに対する放電状態を把握し、動作の最適化を図る必要がある。まず、放電モードを調べるために、スパッタリングターゲットの電流-電圧特性を測定した。図2.10はスパッタリングターゲットに流れ込む電流とそのときの電圧を示す。マイクロ波電力は37W一定で、ターゲットとアンテナはタンタルでできている。図において、●と▲は正抵抗領域、○と△は負抵抗領域を示す。正抵抗領域では、スパッタリングターゲット用の電源は定電圧で動作させた。また、負抵抗領域では、定電流で動作させた。正抵抗領域においては、ターゲット電圧を上げると、電流は急激に上昇する。すなわち、この領域ではターゲットの電流はバイアス電圧に依存することを示している。この状態で電圧を上げていくと、ターゲットは加熱され、あるしきい値を越えると熱電子を放出する¹⁴⁾。この

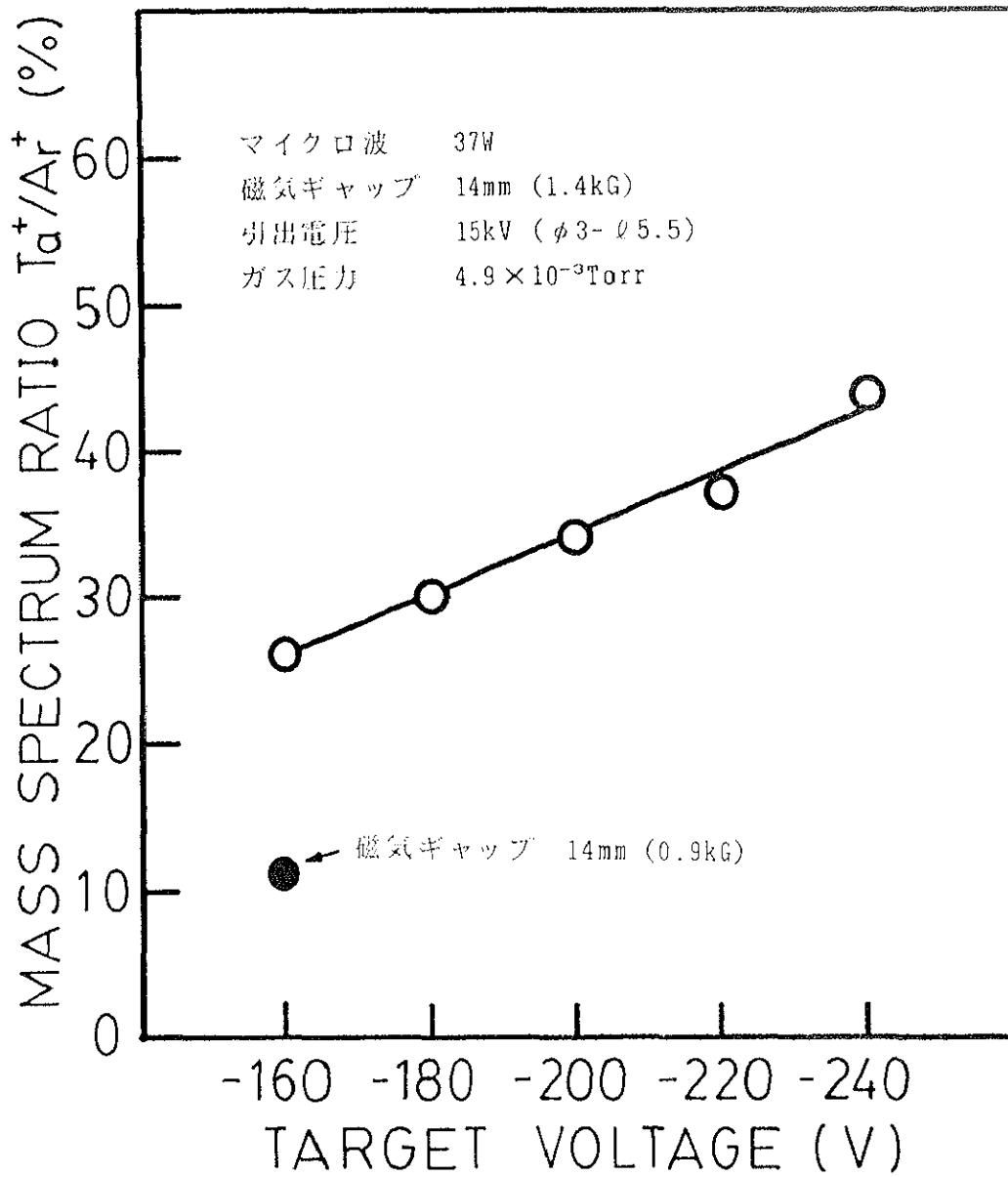


図2.9 Ta^+/Ar^+ のスputタリング電圧依存性

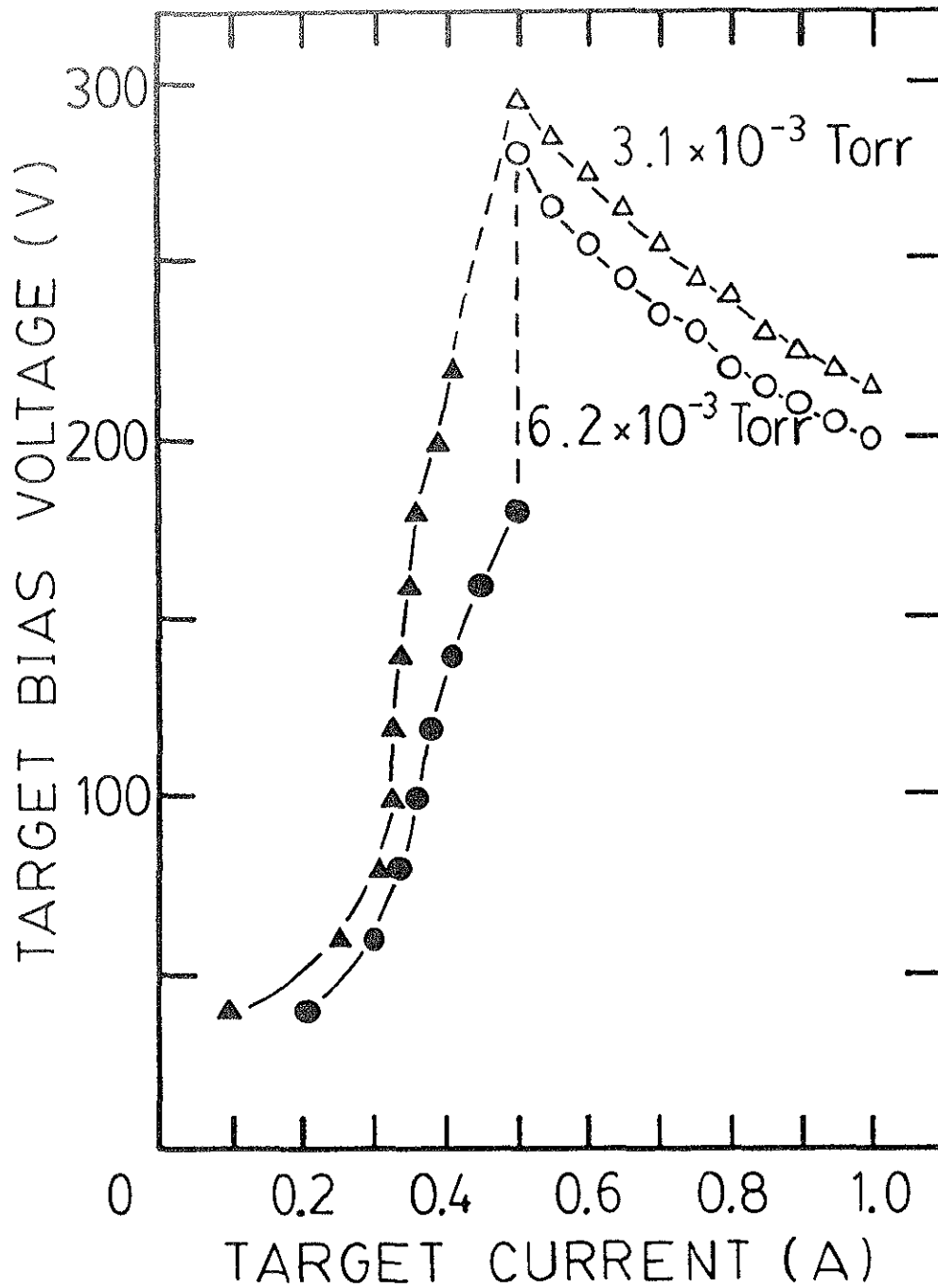
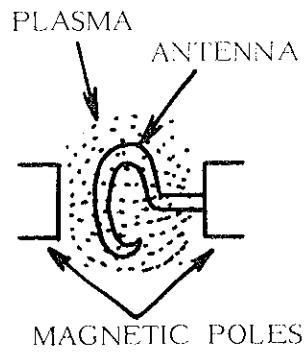
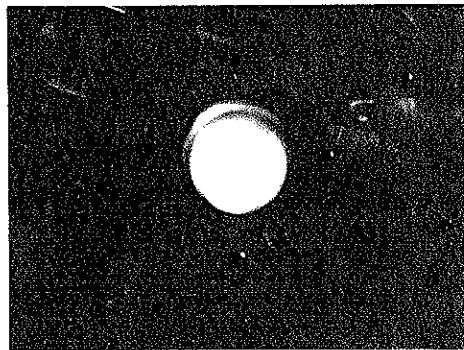


図2.10 スパッタリングターゲットに流れ込む電流とそのときの電圧。●と▲は正抵抗領域、○と△は負抵抗領域

POSITIVE-RESISTANCE REGION



NEGATIVE-RESISTANCE REGION

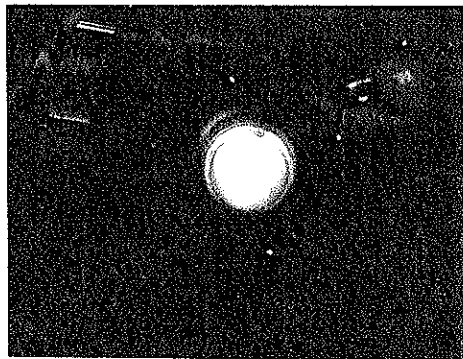


図2.11 正抵抗領域と負抵抗領域のプラズマ状態の写真と模式図

とき、電子の放出が急激に多くなり、放電モードは正抵抗領域のグローから、定電圧のスパッタリング電源ではコントロールできないアークとなり負抵抗領域へと移行する。この曲線の正抵抗領域は冷陰極型 P I G イオン源の電流 - 電圧特性に、負抵抗領域は熱陰極型 P I G イオン源の電流 - 電圧特性に一致する¹³⁾。

図2.11は正抵抗領域と負抵抗領域のプラズマ状態の写真と模式図を示す。この写真は、図2.1のガス導入口のところに覗き窓（ $\phi 20\text{mm}$ ）を取り付けて写したもので、中央ターゲットは用いていない場合である。また、放電維持用ガスは、スパッタ粒子による窓の汚れが少なくなるように、酸素にしてある。負抵抗領域のイオン源プラズマは磁極間に強く圧縮されているように見える。この結果からも、負抵抗領域では、ターゲットから電子が放出されて、プラズマ生成室の軸方向でプラズマ密度が濃くなっているため、アーク放電状態であることを示している。

(a) 正抵抗領域

図2.12はTa⁺イオン電流のスパッタリングターゲット電圧依存性を示す。このときの入力マイクロ波電力は37Wで、プラズマ生成室のガス圧力は 3.1×10^{-3} と 6.2×10^{-3} Torrである。ターゲット電圧はイオン源内壁に対して負であるが、以下では混乱を避けるためにマイナス符号を省略する。また、図中ではマイナス符号を省略した場合、ターゲットバイアス電圧（Target Bias Voltage）と表示した。ターゲット電圧が220Vで、ガス圧力が 6.2×10^{-3} Torrのとき、Ta⁺イオンビームを115 μ A得ることができた。放電が安定な領域は、ガス圧力が 3.1×10^{-3} Torrのときはターゲット電圧が280V以下、また 6.2×10^{-3} Torrのときは220V以下である。これ以上ターゲット電圧を上げていくと異常放電により不安定になり、定電圧電源ではコントロールできない放電領域に移行する。このイオン源では、ターゲット電圧を高くすることにより、スパッタリング電圧が高くなりスパッタ収量が増加すること、および、P I G放電のパワーが高くなりプラズマ密度が高くなるという両方の効果があり、金属イオン量が急激に多くなると考えられる。

図2.13はW⁺イオン電流のスパッタリングターゲット電圧依存性を示す。動作条件は図2.12と同じである。放電が安定な領域は、ガス圧力が 3.1×10^{-3} と 6.2×10^{-3} Torrのときどちらも300V以下である。放電安定領域がタンタルのターゲットを用いた場合よりも広がっている。これは二次電子の放出（ γ 作用）がタンタルの方がタングステンより多いこ

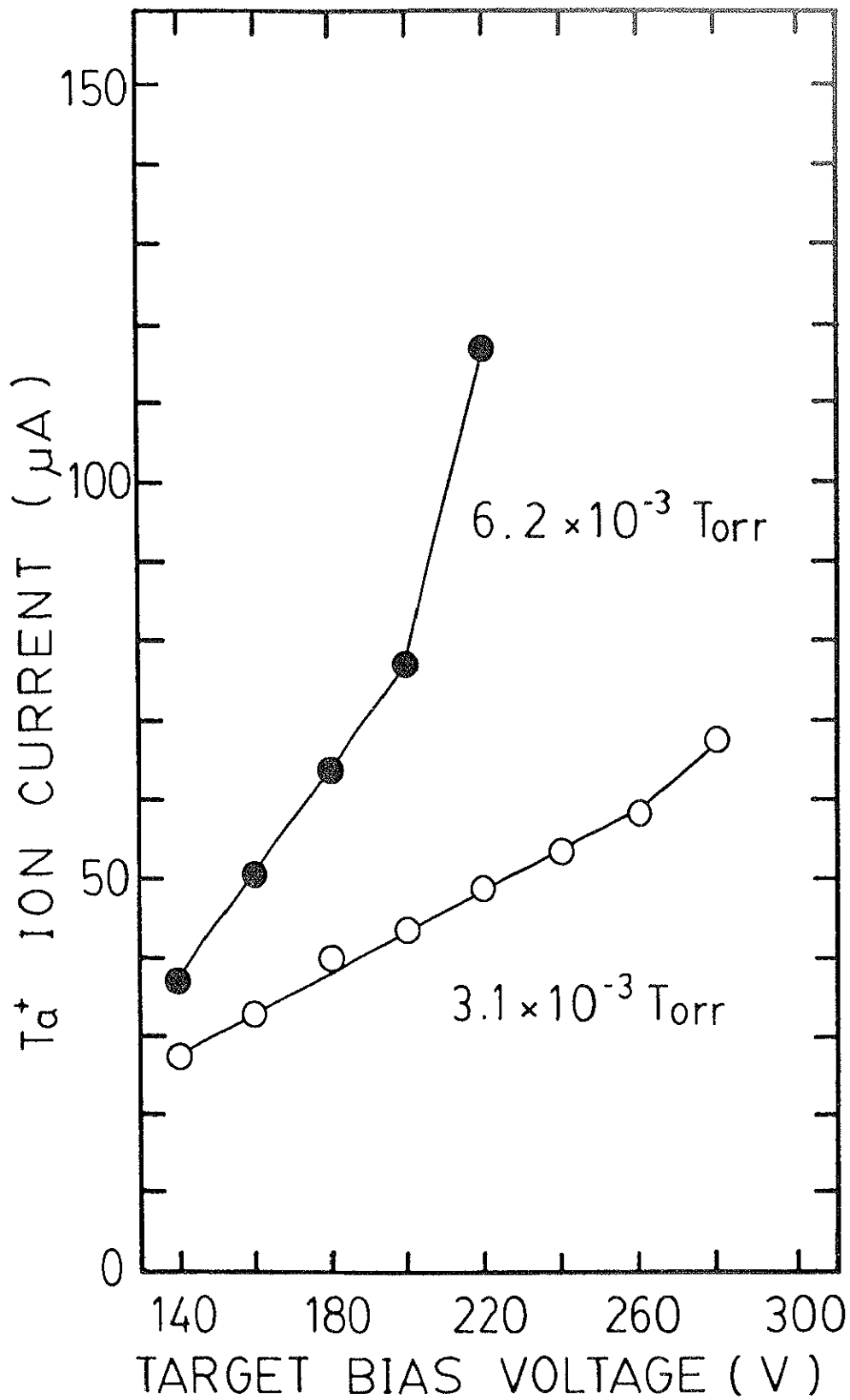


図 2.12 Ta⁺イオン電流の正抵抗領域でのスパッタリングターゲット電圧依存性

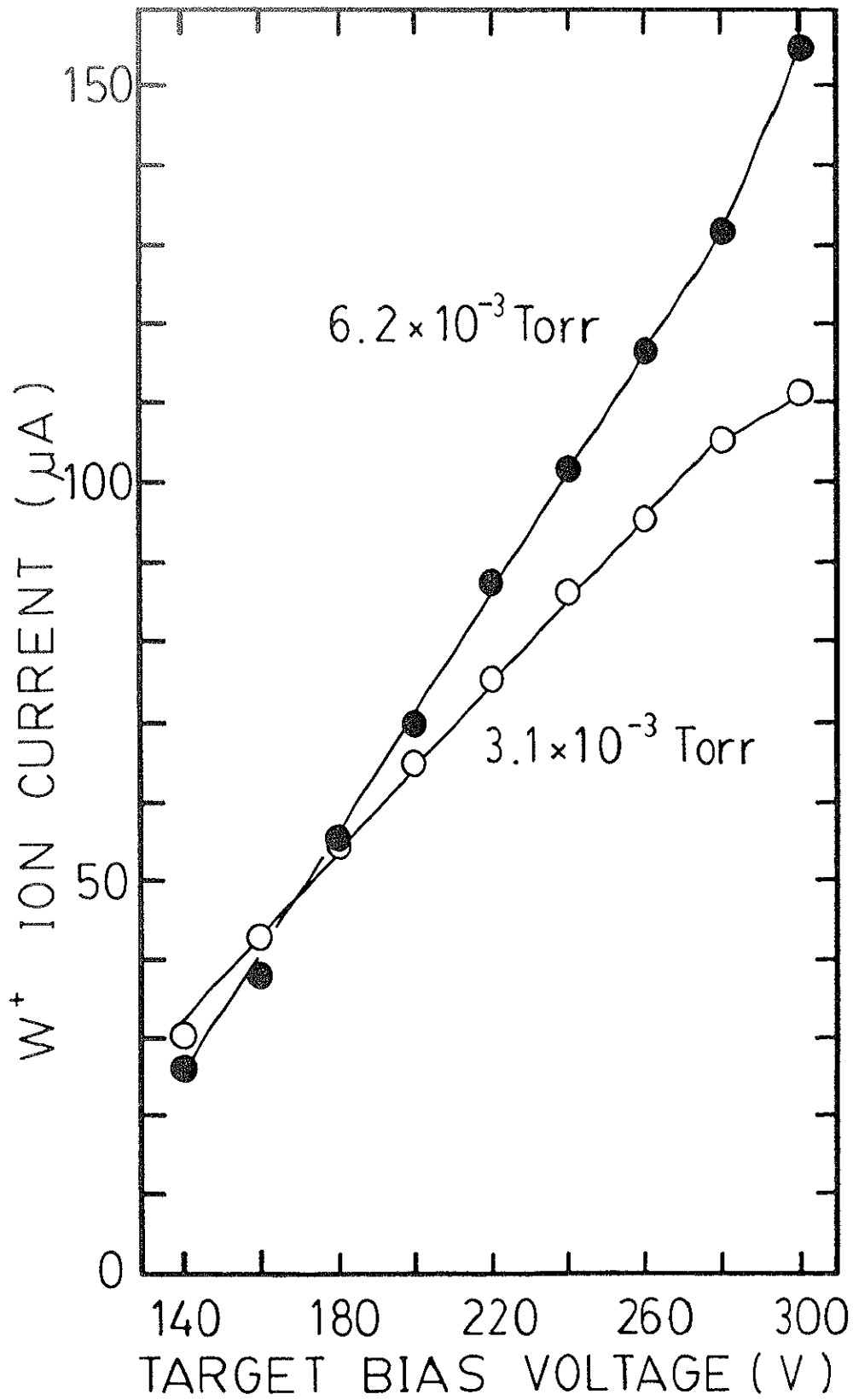


図2.13 W⁺イオン電流の正抵抗領域でのスパッタリングターゲット電圧依存性

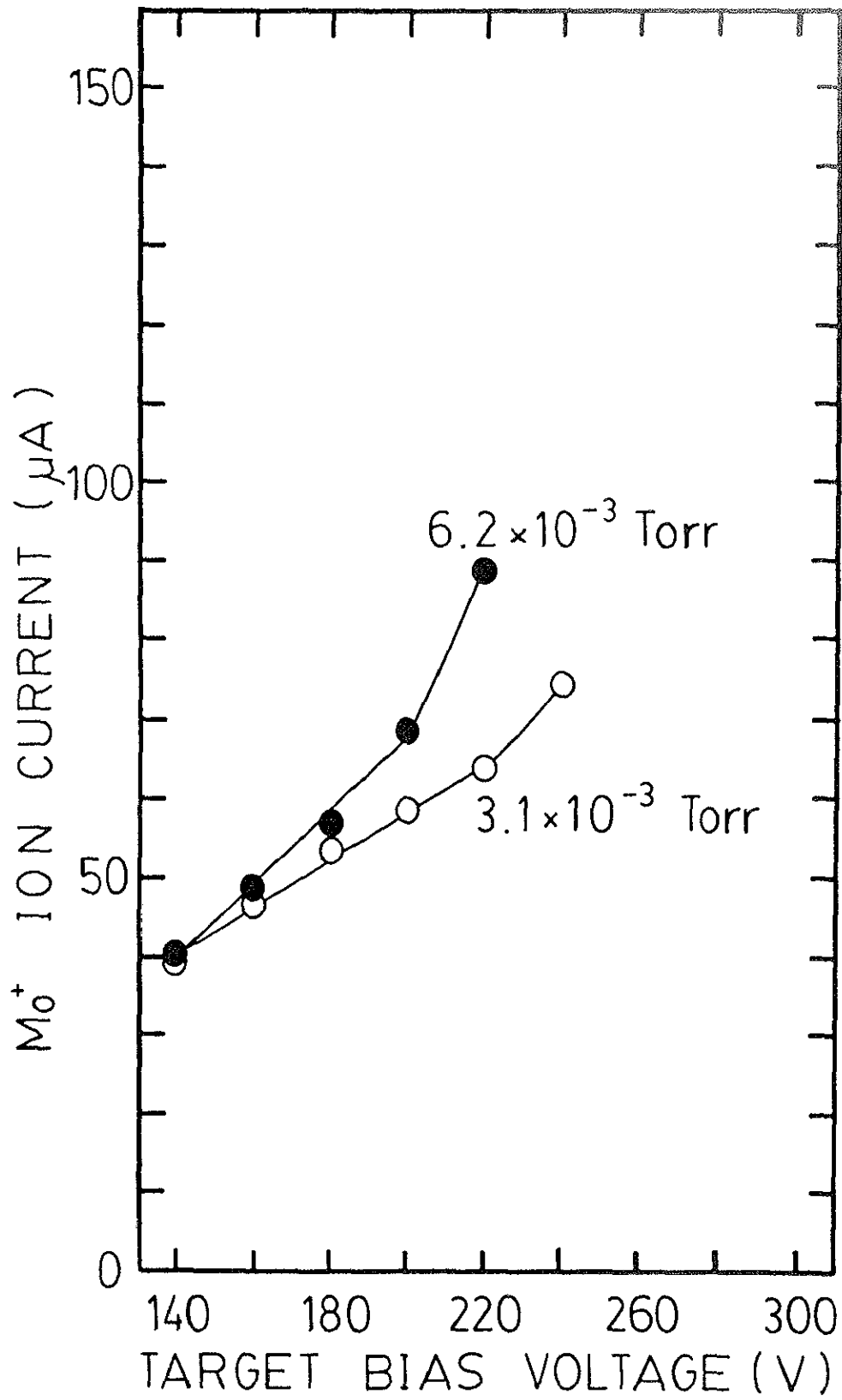


図2.14 Mo⁺イオン電流の正抵抗領域でのスパッタリングターゲット電圧依存性

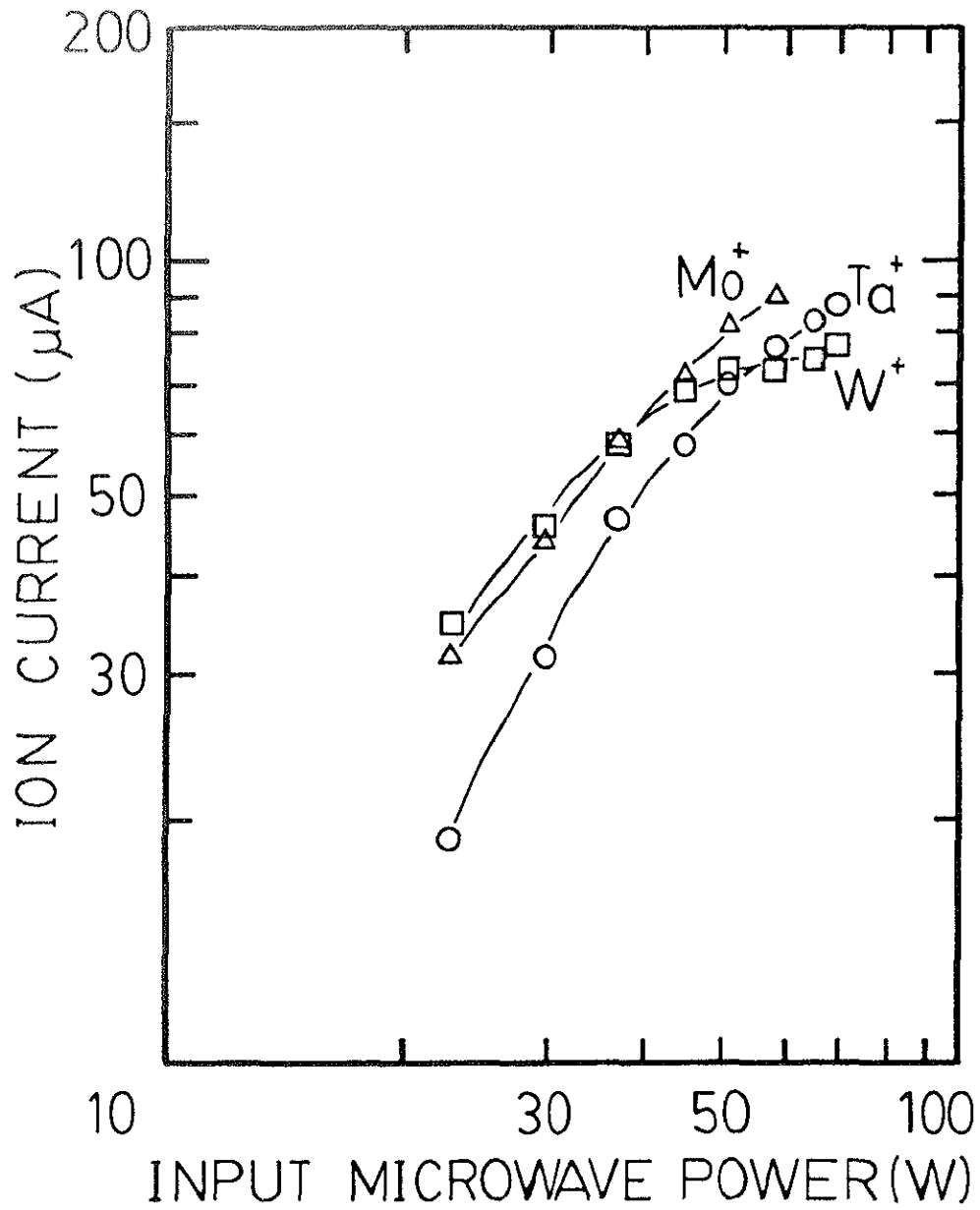


図2.15 正抵抗領域でのマイクロ波電力に対するTa⁺、W⁺、Mo⁺イオン電流

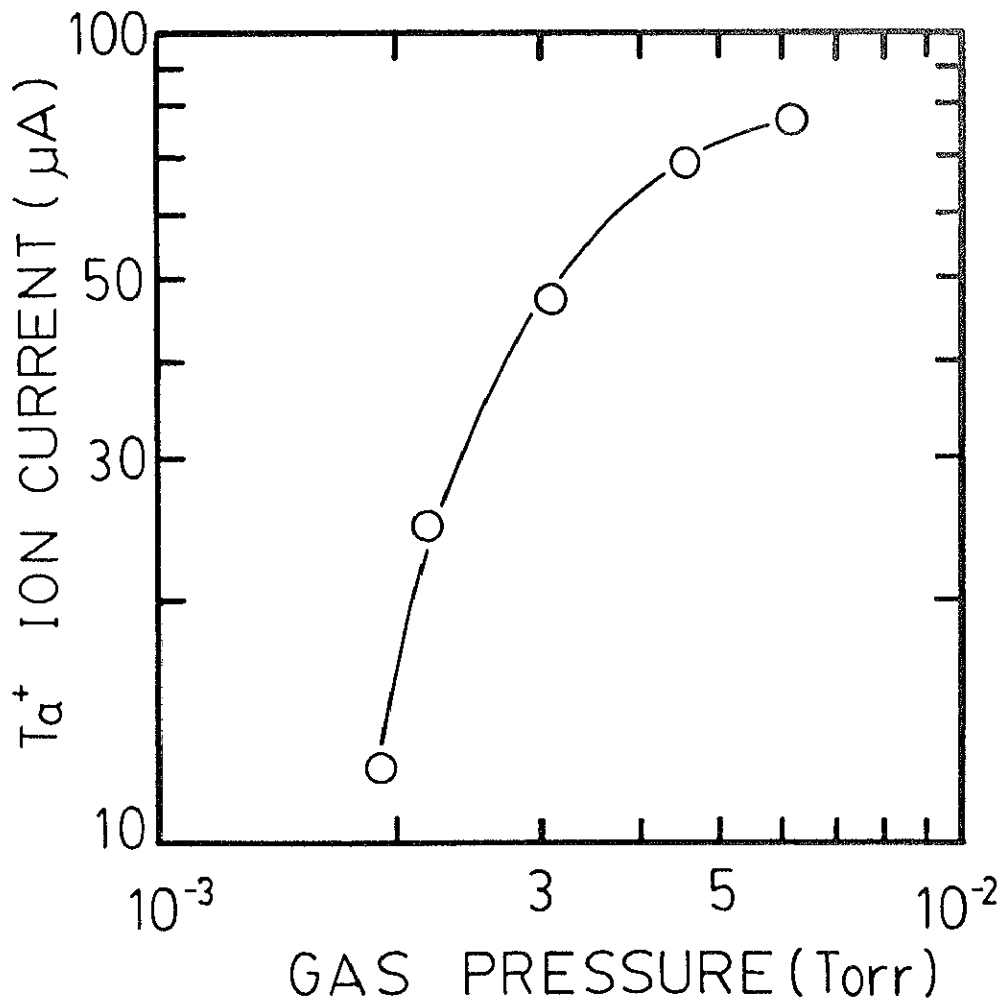


図2.16 正抵抗領域でのイオン源内のアルゴンガス圧力に対する Ta^+ イオン電流

とに関係があるのではないかと考える。

図2.14は Mo^+ イオン電流のスパッタリングターゲット電圧依存性を示す。動作条件は図2.12と同じである。これらの結果から、 Ta^+ イオン電流は、 W^+ や Mo^+ の場合に比べ、アルゴンのガス圧力により大きく依存していることがわかる。

図2.15はマイクロ波電力に対する Ta^+ 、 W^+ 、 Mo^+ イオン電流を示す。動作条件はガス圧力が 3.1×10^{-3} Torr、ターゲット電圧が200Vである。イオン源を正抵抗領域で動作させたとき、金属イオン電流は入力マイクロ波電力の増加に伴って直線的に増える。PIG放電では電極（ここでは、ターゲット）から二次電子が出て、その電子が放電を維持している。そのために、二次電子電流が多くなり、そのエネルギーが高くなると、電子電流が鼠算式に多くなり、アーク放電に移行し、放電が不安定になる。しかし、アーク放電に移行する手前で動作させると、今度は電子の供給量が不安定になり、放電が維持できない。そこで、この動作領域で、マイクロ波を印加すると、波動加熱により電子にエネルギーが与えられ、アーク放電に移行することなく電子温度が高くなり（Arの電離に必要なエネルギー以上の電子の数が増加する）、放電がグロー領域で維持されると考えられる。

図2.16はイオン源内のアルゴンガス圧力に対する Ta^+ イオン電流を示す。このときのマイクロ波電力は37W、ターゲット電圧は200Vである。放電は 10^{-4} Torr台まで維持されるが、 Ta^+ イオン電流は急激に低下する。例えば、ガス圧力が 8×10^{-4} Torrのとき、 Ta^+ イオン電流は約500nAであった。また、イオン電流は 6×10^{-3} Torrで飽和する。この理由は、ガス圧力が高くなったために、イオン源内の平均自由行程がプラズマ生成室よりも短くなり、アルゴンガスとの衝突により、 Ta^+ イオンが中性化したり、電子温度が低くなることより、Taのイオン化率が低下することに関係があるのではないかと考える。それ以外にも、プラズマ密度が高くなりすぎて、このイオン引き出し電極形状と電位では十分に引き出されなためだとも考えられる。

(b) 負抵抗領域

図2.17は Ta^+ イオン電流のスパッタリングターゲット電流依存性を示す。このときの入力マイクロ波電力は37Wで、プラズマ生成室のガス圧力は 3.1×10^{-3} と 6.2×10^{-3} Torrである。ガス圧力によるイオン電流の変化はほとんど見られない。スパッタリング電流はターゲットに衝突するイオン数とその電荷の平均値の積であるので、もしアルゴンイオンが衝

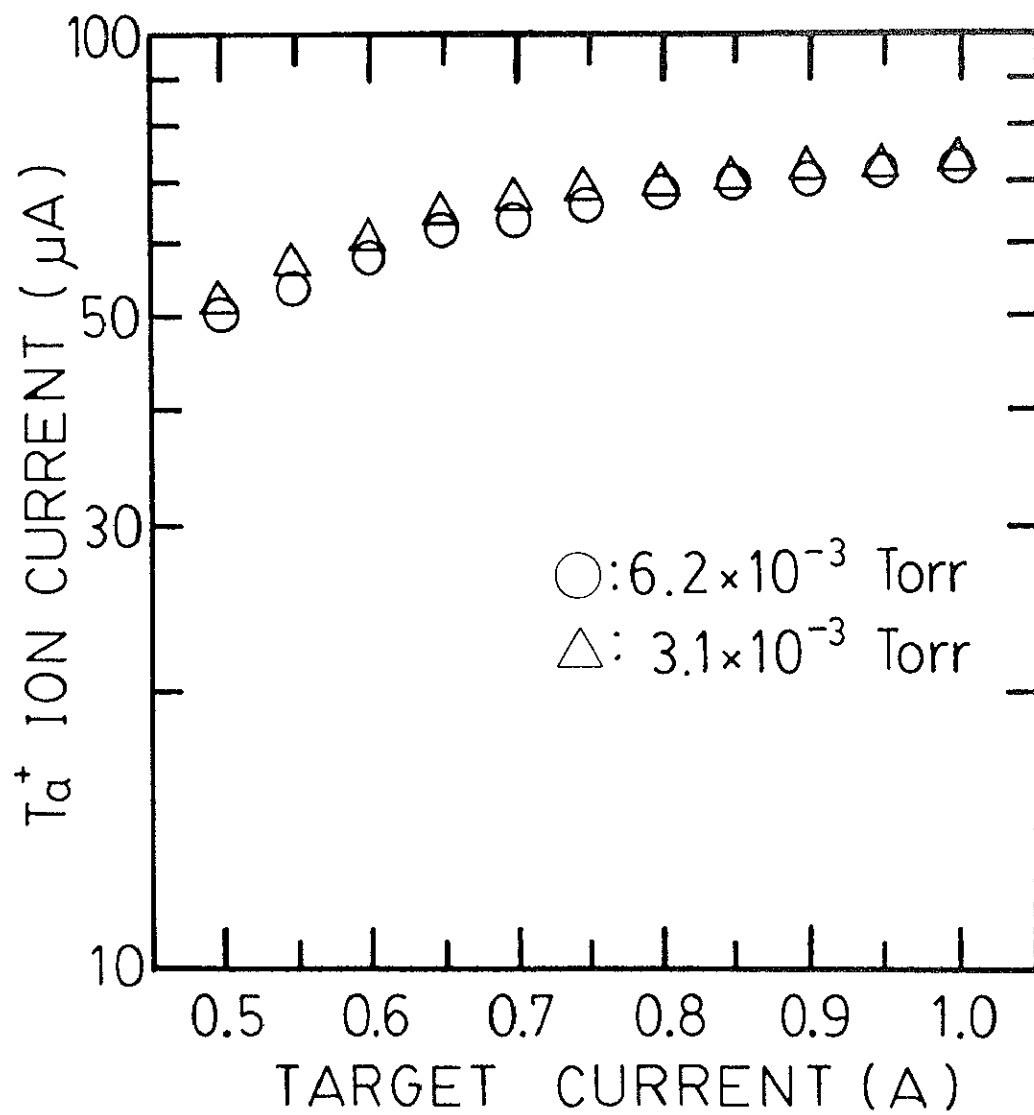


図2.17 Ta⁺イオン電流の負抵抗領域でのスパッタリングターゲット電流依存性

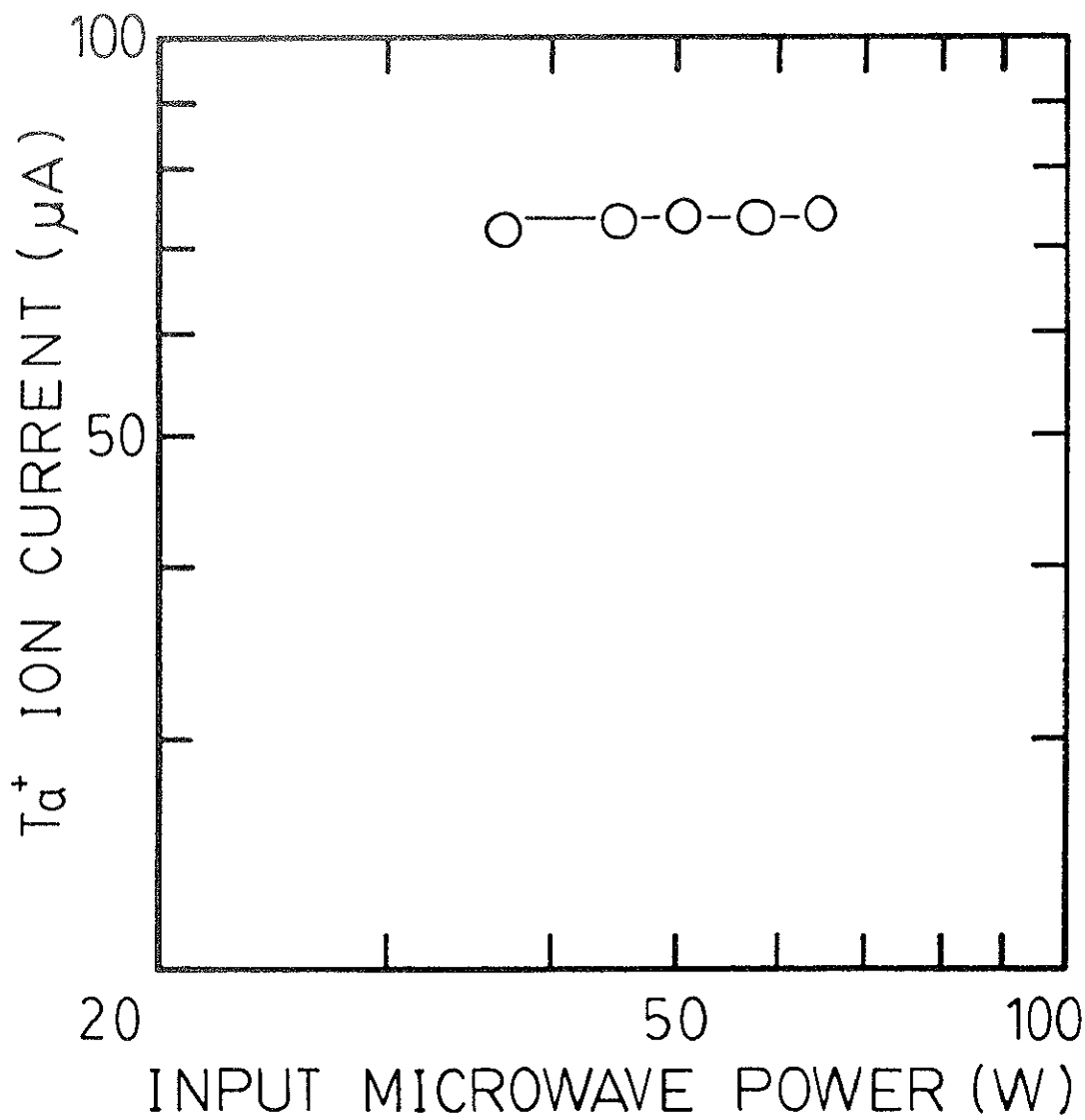


図2.18 負抵抗領域でのマイクロ波電力に対する Ta⁺イオン電流

突の大半を占めているとすれば、ターゲット電流はガス圧力が高くなると増加しているの
 で、イオン電流はガス圧力に依存して増加するはずである。しかしながら、この結果から
 はガス圧力依存性は見られない。これは、アーク放電によるビーム電流のために、プラズ
 マが軸方向中央に集中して、Ta⁺イオンが効率よく引き出されなくなっているためと考え
 られる。

図2.18はマイクロ波電力に対するTa⁺イオン電流を示す。動作条件はガス圧力が6.2×
 10⁻³Torr、ターゲット電流が1 Aである。この結果から、負抵抗領域ではイオン電流はマ
 イクロ波電力に依存しないことがわかる。しかし、マイクロ波電力が35W以下になると、
 金属イオン電流は時間と共に減少して、安定に金属イオンビームが得られにくくなる。す
 なわち、PIG放電、ここではアーク放電がマイクロ波電力の供給で安定したものと考え
 られる。

2.4.3 アンテナとプラズマとの結合

プラズマ生成室のプラズマ密度 n_i は、イオン飽和電流（プラズマ密度制限イオン電流）
 I_{pi} である程度見積もることができ、

$$n_i = I_{pi} (3.0 \times 10^{-13} \cdot a^2 \cdot M^{-1/2} \cdot T_e^{-1/2})^{-1} \quad [\text{cm}^{-3}] \quad (2-1)$$

と表わせる¹²⁾。ここで、 a は引き出し孔の半径 (cm)、 M は質量数、 T_e は電子温度 (eV)
 である。本イオン源において、マイクロ波放電（入力電力37W）のみで動作させたとき、
 Arガス圧力が6.2×10⁻³Torrで、引き出し電力が約20kVで、Arイオン電流は飽和し、その
 ときのイオン電流は1.5mAであった。また、引き出し孔の半径は1 mmであり、電子温度
 を5 eVと仮定すると、(2-1) 式より、プラズマ密度は1.5×10¹²cm⁻³となり、高密度プラ
 ズマが生成されていることがわかる。

一方、プラズマ中を伝播するマイクロ波に対して、プラズマ密度が n のとき、マイクロ
 波の周波数 ω ($=2\pi f$) によってカットオフ現象が起こる。周波数 $f = 2.45\text{GHz}$ のマイク
 ロ波に対してカットオフになるプラズマ密度は7.4×10¹⁰cm⁻³である。これ以上の密度
 のプラズマ中をマイクロ波は伝播しないことになる。しかし、本イオン源では、2.45GHz
 のマイクロ波を用いて、10¹²cm⁻³台のプラズマが生成されている。この理由としてはマ

マイクロ波の表皮効果による結合が考えられる。表皮深さ δ は

$$\delta = c(\omega_p^2 - \omega^2)^{-1/2} \quad (2-2)$$

と表わされる¹³⁾。ここで、 c は光速、 ω_p はプラズマ周波数である。 n_e が $1.5 \times 10^{12} \text{cm}^{-3}$ のとき ω_p は $8.5 \times 10^{10} \text{rad/s}$ 、また、 $f = 2.45 \text{GHz}$ のとき ω は $1.5 \times 10^{10} \text{rad/s}$ となるので、(2-2) 式より、 $\delta = 3.6 \text{mm}$ となる。すなわち、プラズマの表面から 3.6mm はマイクロ波とプラズマとの結合により、電子にエネルギーが与えられることを示している。この結果から、アンテナのヘリカル径 ($\phi 15 \text{mm}$) とプラズマ生成室の実質的な寸法 ($l 12 \text{mm} \times \phi 26 \text{mm}$) を考えると、アンテナにより放射されたマイクロ波は表皮効果で、磁気ギャップ間のプラズマ内へ十分浸透し、表皮深さまで進むまでに電子にエネルギーを与え、後は、電子とイオンの拡散により高密度プラズマが維持されると考えられる。

2.4.4 考察

図2.15と図2.18から、正抵抗領域では金属イオン電流は入力マイクロ波電力に強く依存するが、負抵抗領域ではほとんど依存しないことがわかった。PIG放電においては、放電電流は放電電圧に依存するので、スパッタリング電圧の制御の幅が狭くなったり、動作が不安定になったりする。このため、多くのPIG型イオン源では、放電電圧と基本的には独立して電子を供給できるように、独自に加熱できる熱陰極を持っている。本イオン源の正抵抗領域では、マイクロ波電力が電子供給源の役割をしており、マイクロ波電力によってプラズマの電子温度や密度をコントロールすることができるので、金属イオン電流はマイクロ波電力が増加するに従って増えると考えられる。それとは逆に、負抵抗領域では、加熱されたターゲットから過剰の電子が供給されるため、プラズマは磁極間に圧縮され、マイクロ波がプラズマコラムの表面から伝播されるが中心の高密度部分で遮断されるので電子にエネルギーを与えることができない。しかしながら、アンテナの近傍の低密度部分にはマイクロ波から電子にエネルギーが与えられるので、放電領域が固定され、PIG放電が不安定になるのを防止すると考えられる。

図2.19はターゲット電圧に対する全入力電力(マイクロ波電力+PIG放電電力)当たりの Ta^+ イオン電流を示す。このときのプラズマ生成室のガス圧力は 3.1×10^{-3} と 6.2×10^{-3}

Torrである。PIG電力はターゲット電圧と電流の積で表わした。この結果から、Ta⁻イオンの生成は正抵抗領域の方が負抵抗領域よりも効率がよいことがわかる。これは、負抵抗領域では、プラズマが軸方向に強く圧縮され、金属粒子のイオン化も軸方向が支配的になるために、引き出し口に飛来する金属イオンが少なくなり、本イオン源のように径方向イオン引き出しでは、効率が悪いのではないかと考える。

2.5 まとめ

PIG放電とマイクロ波放電を組み合わせたスパッタ型のイオン源を開発し、その構成と動作特性について述べてきた。本イオン源は高融点金属のイオンビームの発生に適しており、小型で、安定動作が特徴であり、イオン量も百数十 μ A得ることができる。このイオン源の動作の基本は、

- ① PIG構造の採用
- ② マイクロ波の導入
- ③ 強磁場の印加

である。それぞれの役割は、①が、電子の閉じ込め、スパッタリングの強化、および、マイクロ波導入口の付着物の除去である。また、②は電子のエネルギー供給源であり、③は放電維持用ガスイオン (Ar⁺) の閉じ込めである。これらがうまく調和して、高効率の金属イオン引き出し、安定動作、および、低ガス動作が可能になった。その結果、従来のイオン源では得られなかったプラズマ特性とイオンビーム特性が実験的に示され、特に、高融点金属をイオンビームとして利用する薄膜形成プロセスに適しているイオン源であることがわかった。すなわち、新しいタイプのイオン源を提案し、従来から必要とされていたが、十分にビーム量が得られていなかった高融点金属イオンビームの生成の可能性を見出した。

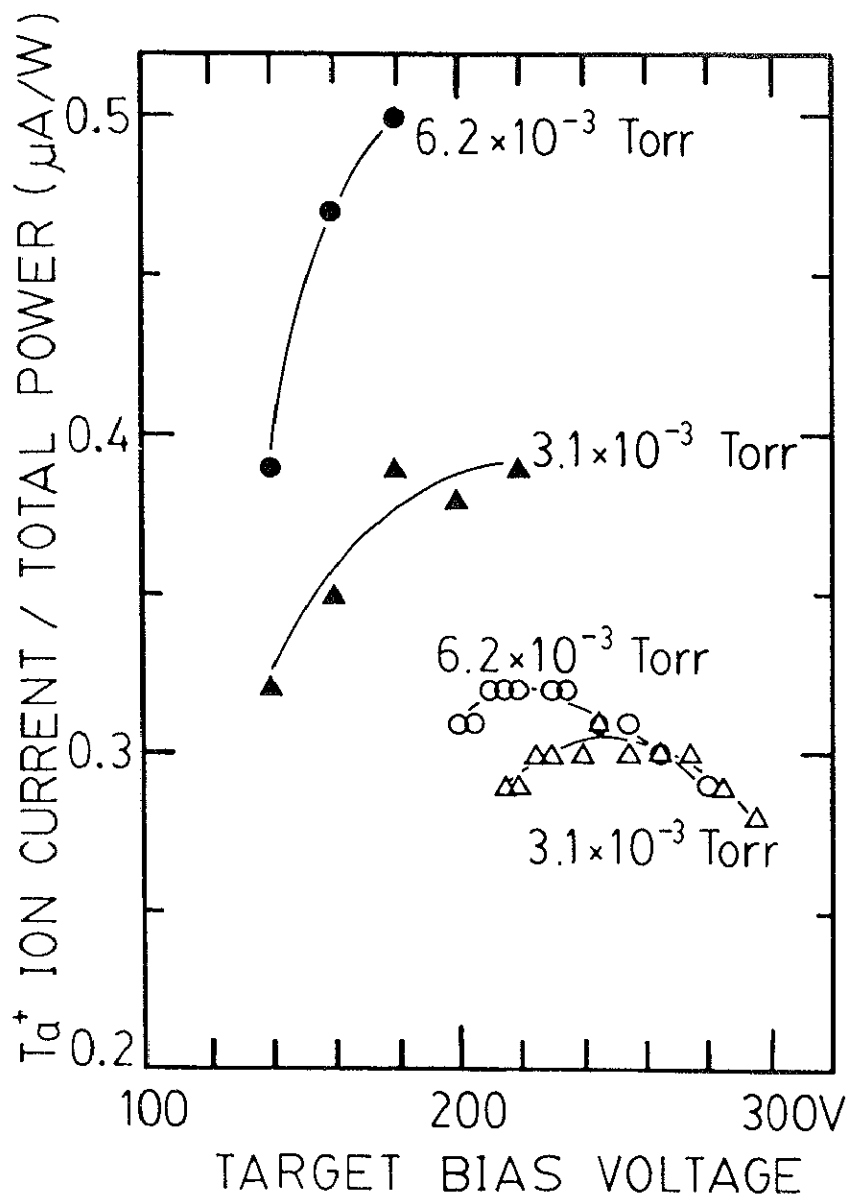


図2.19 ターゲット電圧に対する全入力電力（マイクロ波電力+PIG放電電力）当たりのTa⁺イオン電流。●と▲は正抵抗領域、○と△は負抵抗領域

第 2 章 参考文献

- 1) H. R. Kaufman, J. J. Cuomo, and J. M. E. Harper, *J. Vac. Sci. Technol.*, **21**, 725 (1982).
- 2) M. Menzinger and L. Wahlin, *Rev. Sci. Instrum.*, **40**, 102 (1969).
- 3) S. Matsuo and Y. Adachi, *Jpn. J. Appl. Phys.*, **21**, L4 (1982).
- 4) NIKKEI NEW MATERIALS, 1987年3月30日号、p.49.
- 5) 谷田和雄、*応用物理*、**40**, 408 (1971).
- 6) B. Gavin, *IEEE Trans. Nucl. Sci.*, **NS-23**, 2, 1008 (1976).
- 7) K. J. Hill and R. S. Nelson, *Nucl. Instr. Methods*, **38**, 15 (1965).
- 8) J. M. E. Harper, J. J. Cuomo, and H. R. Kaufman, *J. Vac. Sci. Technol.*, **21**, 737 (1982).
- 9) 高村秀一、『プラズマ加熱基礎論』名古屋大学出版会 (1986) p.199.
- 10) Y. Yoshida, H. Tsuji, J. Ishikawa, and T. Takagi, *Proc. 10th Symp. on Ion Source and Ion-Assisted Technology*, ed. T. Takagi (Kyoto Univ., Kyoto, 1986) p.111.
- 11) J. R. J. Bennett, *IEEE Trans. Nucl. Sci.* **NS-19**, 48 (1972).
- 12) 石川順三、京都大学博士論文、『ビームプラズマ形イオン源に関する研究』、1978年10月.
- 13) F. F. Chen, *Introduction to Plasma Physics*, Plenum Press (1974).

第3章 イオンビーム膜堆積装置

膜の品質を決定する要素として、純度、組成、結晶性、付着力などがある。これらの要素がより高い状態にある高品質膜を形成する装置を設計するには、次の条件を考慮すればよい。

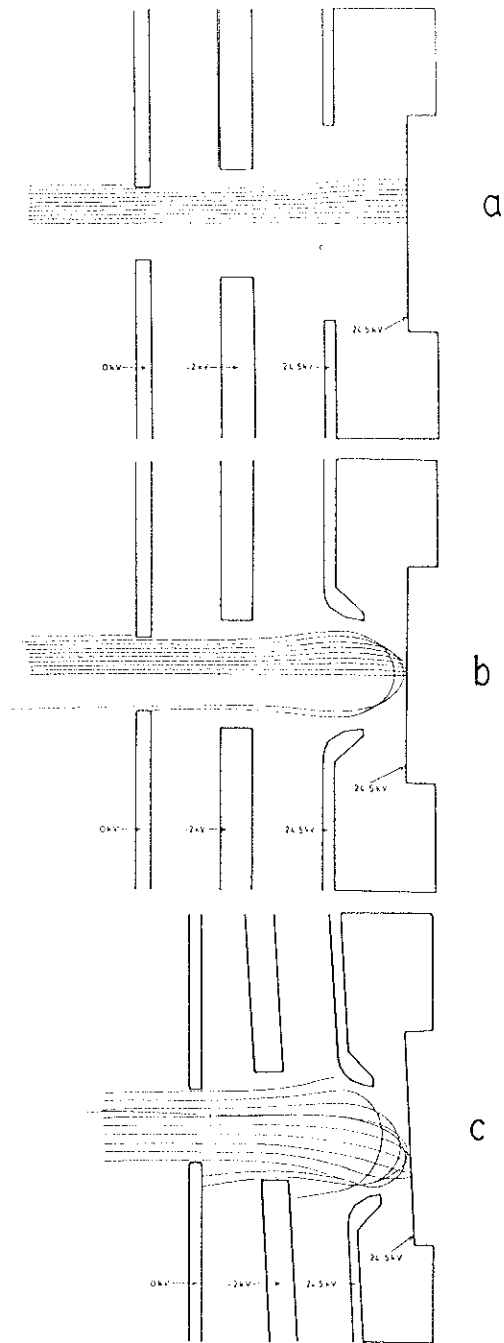
- ① 膜堆積中に残留ガスによる汚染が最小になるように、試料チャンバーのガス圧力は十分に低くする必要がある。
- ② 膜の純度をよくするためには、原材料の純度ができるだけ高い状態で堆積させる。
- ③ 基板や膜中のダメージを少なくしたり、平坦性をよくするためには、基板に到達する膜形成材料のエネルギーをほかのパラメーターとは独立に調整できるようにする。
- ④ 組成比、結晶性をコントロールするためには、基板に到達する膜形成材料の量をほかのパラメーターとは独立に調節できるようにする。

以上の条件を可能にするには、自由度の高い、すなわち、おのおののパラメータを独立に制御できる膜形成方式が必要である。

自由度の高い膜形成を実現させるために、種々のイオンビームデポジション（IBD）装置が開発されている^{1)~3)}。しかし、現状のイオンビーム技術では極めて限られた数のイオン種のみが多用されているだけである。そこで、第2章に示したPIG構造小型マイクロ波金属イオン源をIBD装置に応用することにより、今まで報告されていなかった高融点金属を用いたIBDが可能になる。また、化合物の薄膜を形成する上で、各種のイオンビームの複合化も必要であるが、複合ビームによるIBDも現在のところ報告されていない。これは、二方向から来るビームの同時減速の困難さに起因する。そこで、同時に二方向から来るビームを基板上で重ね合わせることができる減速電極系を開発することにより、より自由度の高い化合物薄膜形成が可能となる。

3.1 イオンビーム軌道解析

IBD装置の設計をおこなうためにはイオンビームの軌道解析が必要である。特に、減速系中のイオンビームの軌道のシミュレーションは、減速集束レンズの設計の有力手段となる。すでにFreemanは図1.4の構成の減速レンズのシミュレーションをおこなっており⁴⁾、



Dimensions in Arbitrary Units
 Initial Ion Beam Energy = 25 keV

図3.1 図1.4の構成の減速レンズのシミュレーション結果。(a)弱い集束、(b)強い集束、
 (c)偏向を伴った強い集束

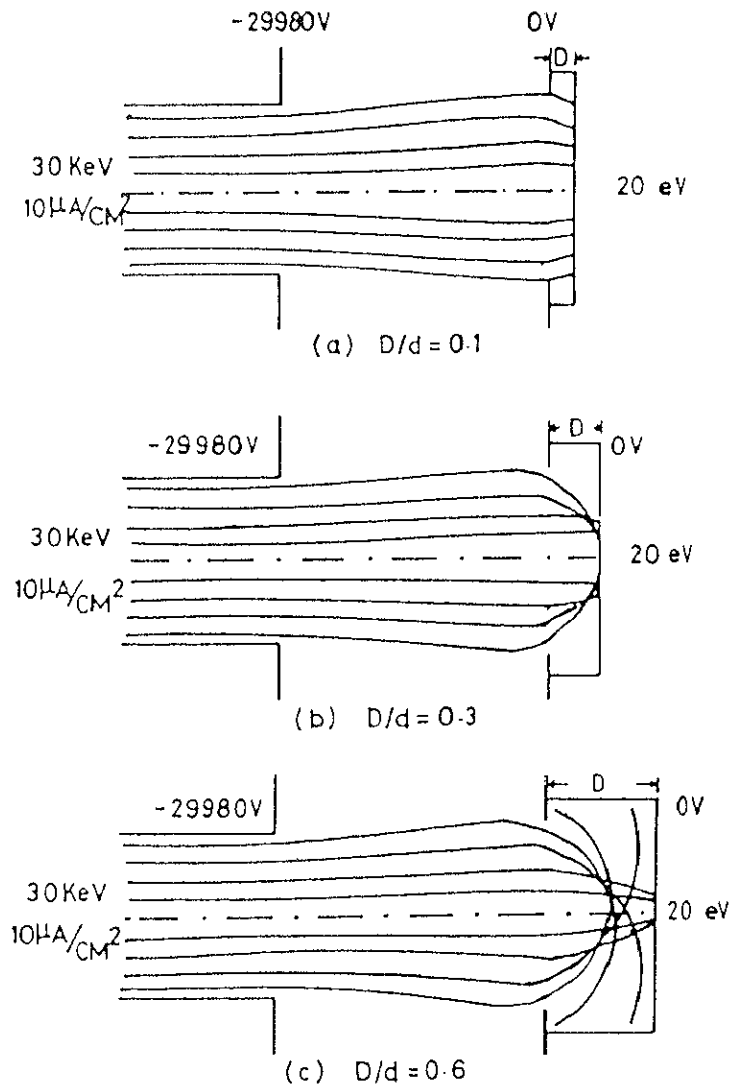


図3.2 図1.13に示す減速系の概念のシミュレーション結果。dは基板台の開口径

それらを図3.1に示す。また、Chengらも図1.13に示す減速系の概念のシミュレーションをおこなっており⁵⁾、その結果を図3.2に示す。またAltonらもイオンビームの減速系の設計とそのシミュレーションをおこなっており、図3.3に減速系を、図3.4にシミュレーション結果を示す⁶⁾。Ishikawaはイオンビームの減速電極系の設計に関しての指針を二点示している⁷⁾。第一点は、ビームが等電位領域から減速電界領域に入る部分において発散レンズ系を形成するので、これを打ち消すための集束レンズ系を構成する必要があること。第二点は、低速イオンの空間電荷によるビームの発散を抑えるため、Pierceが提案した一次元の空間電荷制限下における電界形成を、角度 67.5° を有するWehnelt電極を取り付けることにより、補正する必要があることである。図3.5にこれらを考慮して構成したIshikawaらの減速電極系とそのシミュレーション結果を示す⁸⁾。これは差分法によるシミュレーションソフトを使用した解析である。また、Otaらは有限要素法によるイオンビームの三次元シミュレーションソフトを開発し⁹⁾、核融合に用いる中性ビームインジェクション用イオン源の引き出し電極の設計をおこなっている。

空間電荷を考慮したイオンビーム軌道の計算機シミュレーション法を用いれば、任意の電極形状で現実とほぼ同じイオンビーム軌道を得ることができる。この結果をもとに、種々の電極の構成を変えてシミュレーションを繰り返すことにより、大電流輸送系の最適設計を図ることができる。特に、大電流イオンが必要で、イオンエネルギーを急激に変化させなければならないIBD装置の設計には、より厳密な解析手段が必要となる。

そこで、関原らは、従来の解析方法よりもより正確な軌道が得られる、境界要素法によるイオンビーム軌道のシミュレーションソフトを開発した¹⁰⁾。境界要素法の特徴¹¹⁾として、

- (1) 入力データの取り扱いが容易で、連立一次方程式の元数が少ない。特に三次元解析においては有力な解析である、
- (2) 領域内の所望の点において解析が可能であるため、領域内をいくらでも詳細に調べることができる、
- (3) 境界上の解析の後、領域内部の解析をおこなうため、領域内の任意の点に関する対話形式の計算が可能となる、
- (4) 領域内部の値を知る必要がなく境界面での値や、特性面を知りたいときは当然、領域内部に関する計算をおこなう必要がなく能率的である、

が挙げられる。したがって、イオンビーム軌道の解析にはほかの方法よりも境界要素法が有利であると考えられる。このソフトは、イオンビーム軌道を定量的に評価し、ビーム輸送系

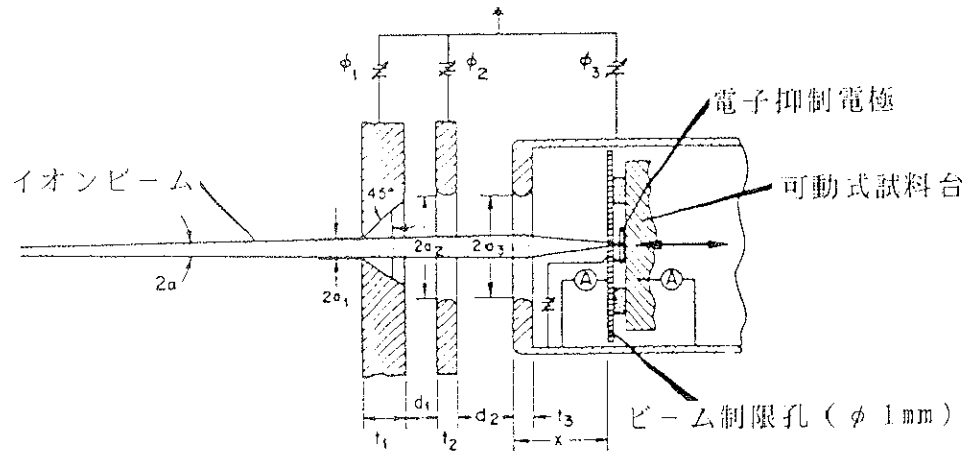


図 3.3 Altonらの減速系

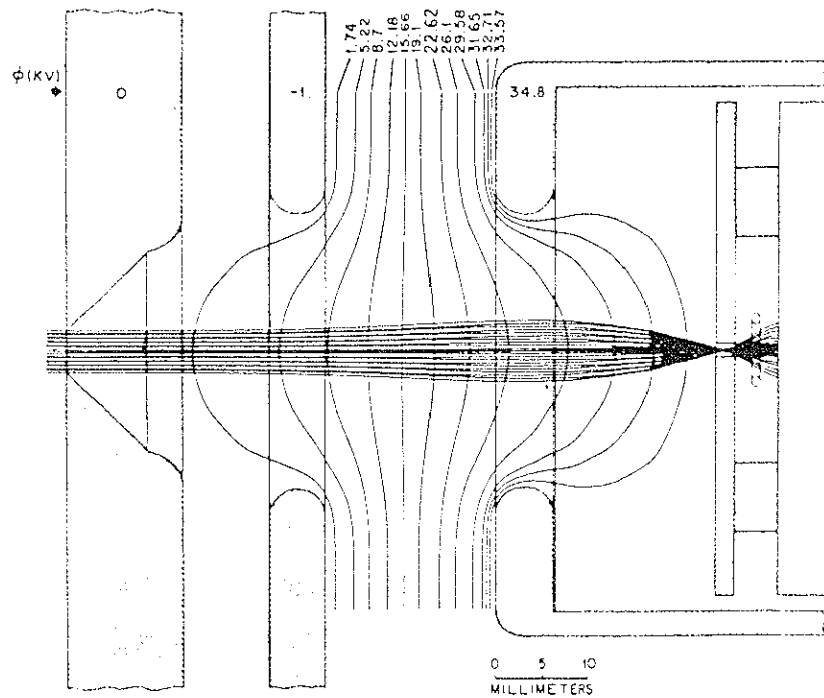


図 3.4 図 3.3 のシミュレーション結果

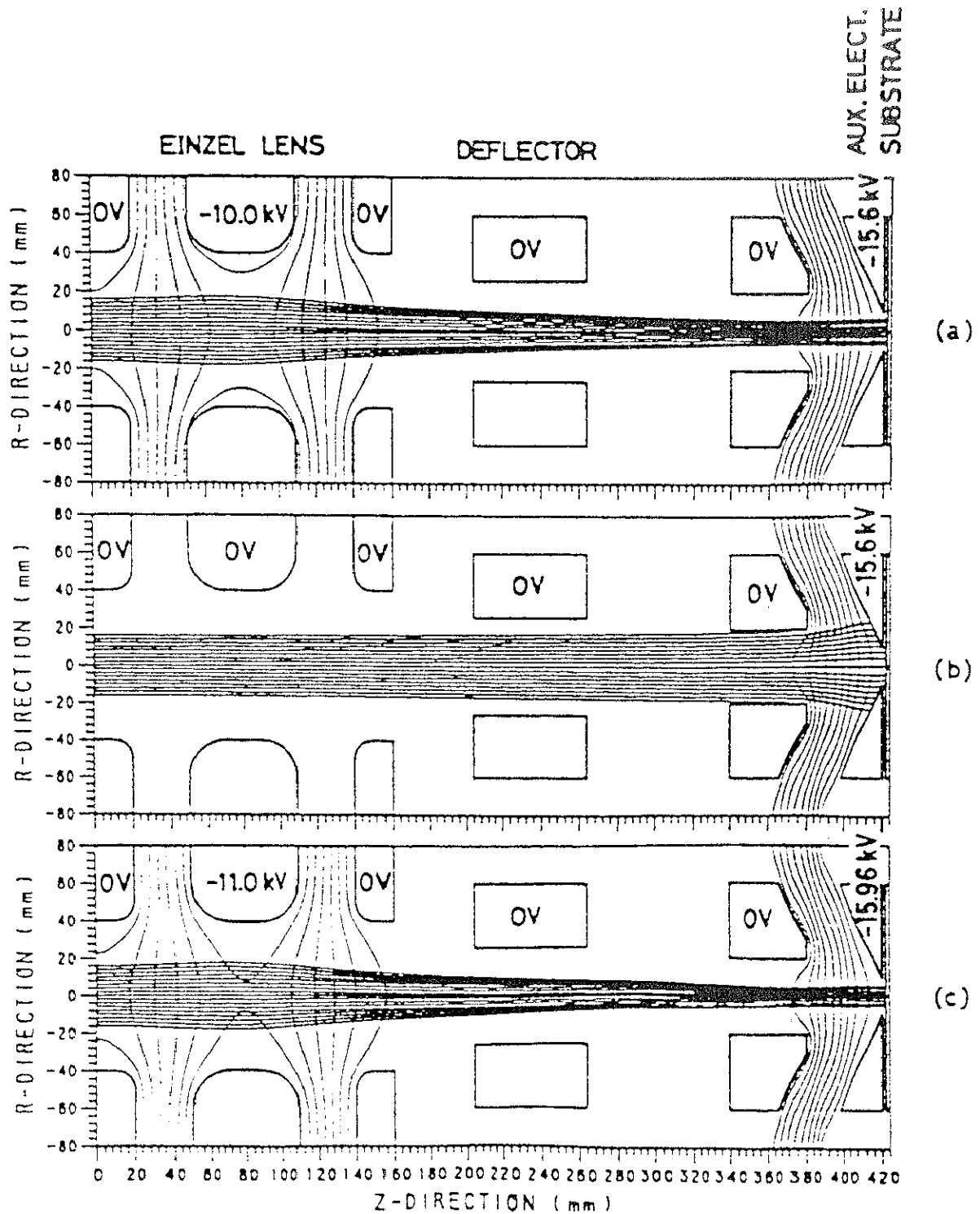


図3.5 Ishikawaらの減速電極系とそのシミュレーション結果。(a)アインツェルレンズを動作させた時の400eVの平行ビーム、(b)アインツェルレンズを動作させなかった時の400eVの発散ビーム、(c)アインツェルレンズを動作させた時の40eVの平行ビーム

の最適化をはかることができ、IBD装置設計の有力手段となる。そこで、以下の設計には境界要素法によるイオンビーム軌道解析を用いた。

3.2 E×B型イオンビーム膜堆積装置

3.2.1 構成と設計指針

図3.6は反応性イオンビーム膜堆積 (reactive ion beam deposition; 以下RIBDと略す) 装置の構成を示す。この装置は金属イオン源、質量分離器、それにイオンビーム減速器で構成されている。RIBDは3つの真空チャンバーからなっている。第一チャンバーはイオン源チャンバーで、金属イオン源、イオン引き出しと集束の機能を兼備えた第一レンズ、および第二レンズが含まれている。第二チャンバーはE×B型質量分離器である。第三チャンバーは超高真空用の膜堆積チャンバーで、第三レンズ、イオンビーム減速器、反応性ガス導入口、それに試料台が含まれている。第一チャンバーは油拡散ポンプで排気され、有効排気速度は1300 l/sである。第三チャンバーは二段のターボ分子ポンプで排気され、有効排気速度は450 l/s、到達真空度は 8×10^{-9} Torrであり、イオン源を動作させたときのガス圧力は 10^{-7} Torr台である。イオン輸送距離は約1.2mで、イオン源から質量分離器の入口までが400mm、質量分離器が340mm、質量分離器の出口から試料台までが500mmである。膜形成は、低エネルギーの金属イオンビーム (数十～数百eV) を反応性ガス雰囲気中の試料に照射することによりおこなわれる。反応性ガスの基板への導入は、基板を取り囲むように設置された環状のパイプに数十個のノズル孔を開け、基板に噴射するようにした。以下に各部の設計指針について述べる。

(a) イオン引き出し系

第2章で述べたPIG構造小型マイクロ波金属イオン源を用いることにより、高密度プラズマ (高融点金属イオンの含有率が高い、即ち重イオンが多いプラズマ) が生成される。しかしながら、このプラズマから金属イオンを効率よく引き出せないと優秀なイオン源とはいえない。イオンの質量数が大きくなったり、電流量が多くなればなるほど、イオン源からビームとしてイオンを効率よく引き出すことは困難になる¹²⁾。そこで、イオンの引き

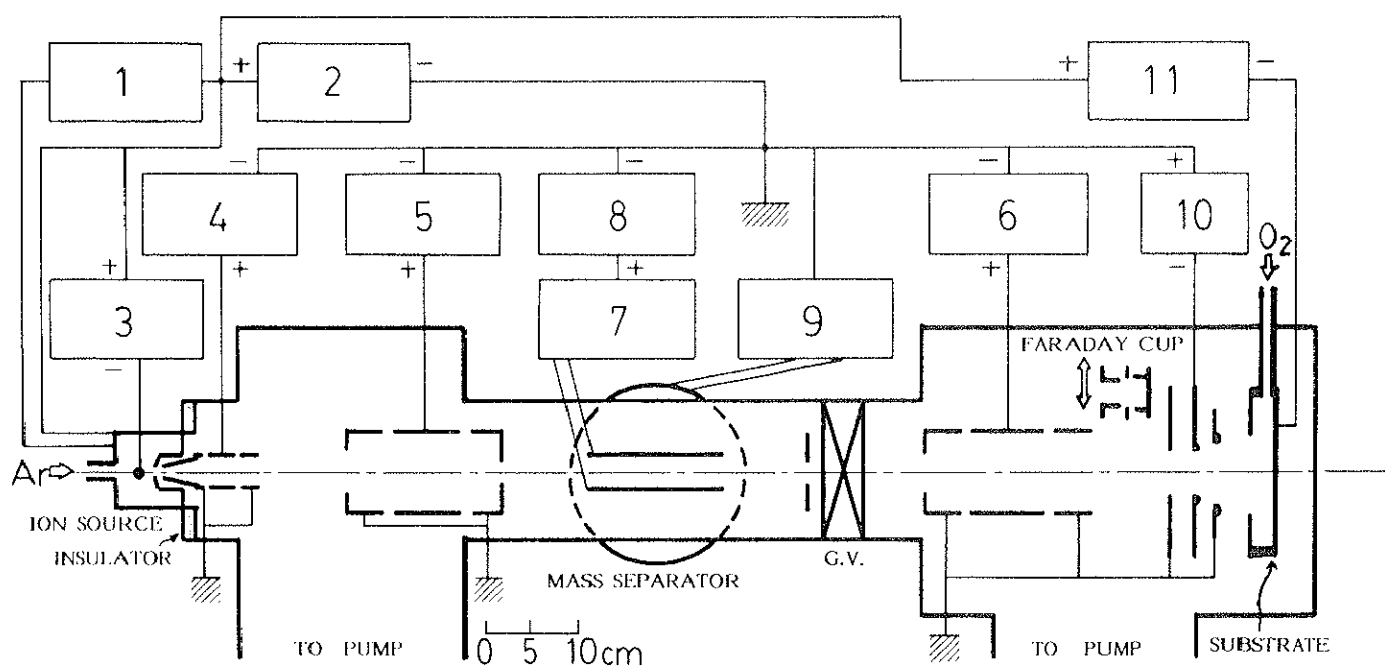


図3.6 反応性イオンビーム膜堆積装置の構成。(1)マイクロ波電源、(2)加速電源、(3)スパッタリング電源、(4)イオン引き出し集束電源、(5)第二レンズ電源、(6)第三レンズ電源、(7)E×B電圧電源、(8)E×B集束電源、(9)E×B磁石電源、(10)電子抑制電源、(11)最終イオンエネルギー用電源

出し系に工夫が必要になる。

イオン引出口から引き出される電流は、イオン自らが持つ正の空間電荷により電界が変化し、引き出されるイオン電流は空間電荷に制限された電流値となる。また、引出電極以後のイオン光学系を考えると、なるべく平行ビームとして輸送させるほうが、輸送効率を高めることになる。すなわち、イオンの引き出しの所で平行ビームが得られるように、空間電荷制限下における電界形成を補正する必要がある。この補正には、電子ビームの引き出しによく使用されるピアス電極¹⁹⁾によって形成される電界が有利である。

効率よくイオンが引き出せる電極の設計には、プラズマ界面の把握が必要であり、そのためには正確なプラズマ界面のコンピューターシミュレーションが有力である。図3.7は平行平板の引出電極によるプラズマ界面からのイオン引き出しのシミュレーション結果を示す。プラズマ条件は、1 価アルゴン、密度 $1 \times 10^{13} \text{cm}^{-3}$ 、電子温度 5 eVであり、引き出し電圧12kV、この時のイオン電流は $535 \mu\text{A}$ である。この結果から、引出電極の手前でクロスオーバーが起こり、ビームは引出電極を通過した後に発散する傾向にある。

図3.8はピアス電極によるイオン引き出しのシミュレーション結果を示す。プラズマ条件は図3.7と同じで、この時のイオン電流は $513 \mu\text{A}$ である。図3.7よりもイオン電流が少なくなっているのは、プラズマ界面が平行になったためにイオンが引き出される面積が減ったからである。この結果から、ピアス電極を用いることにより、均一性のよい平行ビームが得られていることがわかる。そこで、以下の実験ではピアス電極の引き出し系を採用した。

(b) イオンビーム輸送系

イオンビームを効率よく輸送するには、電界や磁界などでビームの発散を押える必要がある。ここでは、ビームの集束に静電界を利用し、対称静電レンズの一種であるアインシュエルレンズを用いた。レンズ設計の留意点は、

- ① ビーム径がレンズ内径に対して十分に小さいこと、
- ② 左右の電界が相互に影響を及ぼさないこと、

である。①に関してはレンズの前にビーム制限孔 (diaphragm) を入れて、ビームをカットして近軸にすればよい。しかし、より多くのイオンビームを輸送するには、カットするビーム量を最小限にしたいので、レンズの内径をできるだけ大きくし、次の輸送系で許容でき

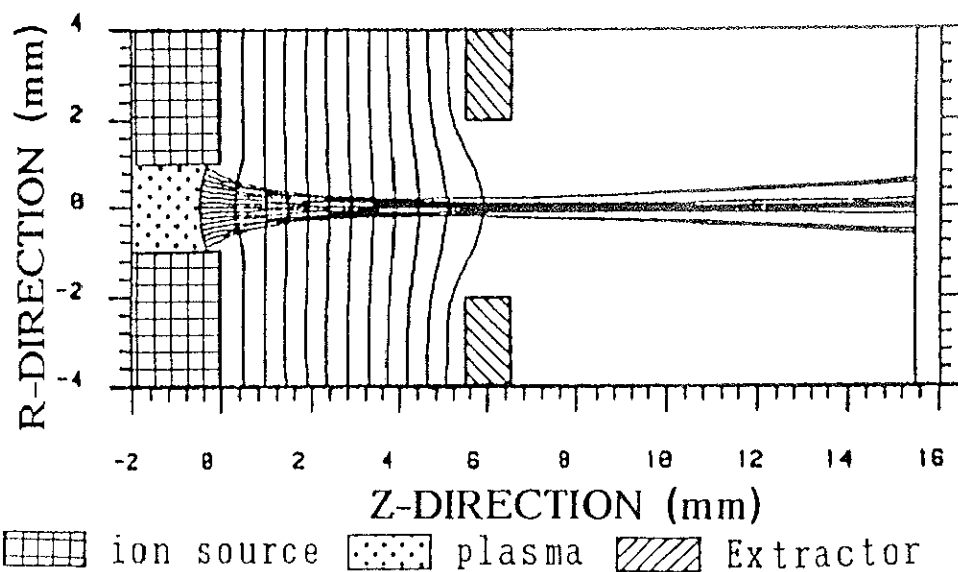


図3.7 平行平板の引出電極によるプラズマ界面からのイオン引き出しのシミュレーション結果

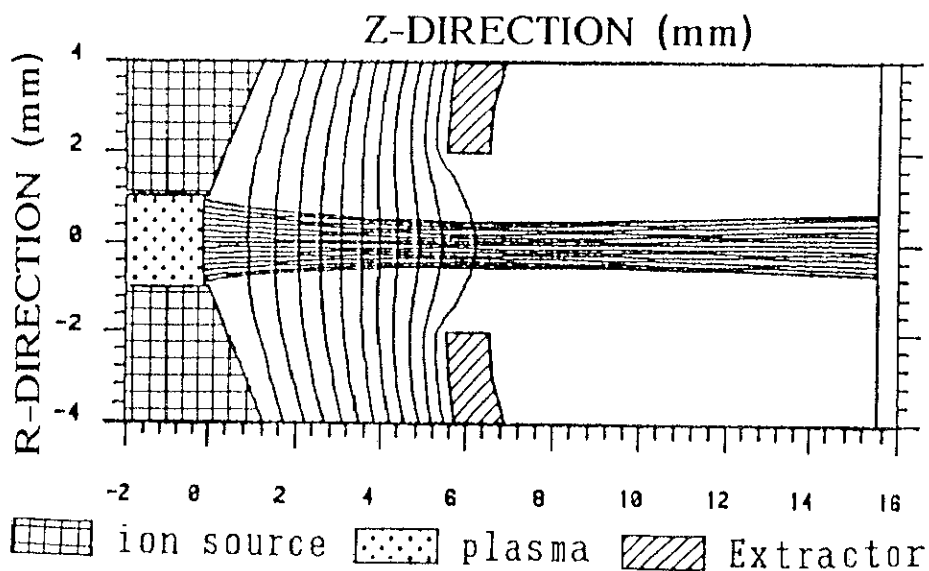


図3.8 ピアス電極によるイオン引き出しのシミュレーション結果

る収差であればビームをカットしないほうがよい。そこで、前の輸送系で発生した迷走ビームだけをカットするために、レンズ径の $1/3 \sim 2/3$ の制限孔を用いればよい。②に関しては、円筒レンズを用い、真ん中の電極の長さは内径と同じ長さで、両側の電極は内径の半分の長さにすれば電界の相互作用がなくなり、収差が少なくなる。図3.9はIBD装置設計のためのシミュレーションの一例を示す。

(c) 質量分離器

質量分離器は直交電磁界 ($E \times B$) を用いた速度分離器を採用した。この分離器はウィーンフィルターとも呼ばれ、ビームラインを曲げずに質量分離ができる。扇形磁石型のように磁界のみの分離器では、重イオンの軌道を変化させるのに大きな磁場が必要であるが、 $E \times B$ 型は、直進させるので、重イオンの輸送に有利である。また、軸対称 (二次元) のドリフト空間、または一次元の平行平板電極としてシミュレーションが可能である。設計指針としては、

- ① 電極形状は、 $\phi 20\text{mm}$ のビームが通過するとき、その領域に一様に電界がかかるような形状にすること、
- ② 電極内でのビームの発散を押えるために、両側の電極にバイアス電圧を印加すること、

である。性能は、最大電界強度 1 kV/cm 、最大磁束密度 6 kG 、また最大バイアス電圧 1.5 kV である。電極の長さは 150 mm で、電極中央から前方 170 mm のところに $\phi 20 \text{ mm}$ のビーム制限孔 (diaphragm) がある。

上記の設計指針を基に、 $E \times B$ 型質量分離器を製作した。設計にはコンピューターによるシミュレーションを利用した。図3.10はイオン源から $E \times B$ 型質量分離器までのシミュレーション結果を示す。この結果は、質量分離器内はドリフト空間として、軸対称モデルで解析したものである。図3.10(a)はイオン源と質量分離器との間に1個のレンズを設けた場合で、質量分離器内のドリフト空間に平行ビームが形成できるように、レンズ位置および電圧の最適化をおこなった結果を示す。このときの、ビームエネルギーは 20 keV である。質量分離器の入口では $\phi 20 \text{ mm}$ のビームを形成することができるが、出口ではおよそ倍の径になっている。図3.10(b)は2個のレンズを設けた場合のシミュレーション結果を示す。ビームエネルギーが 15 keV のときでも、平行ビームが形成できることがわかる。

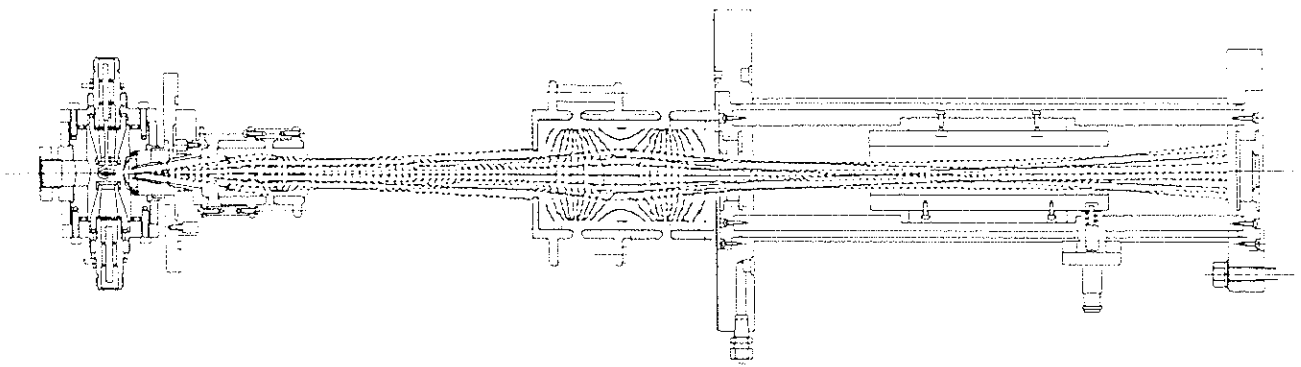


図3.9 IBD装置設計のためのシミュレーション

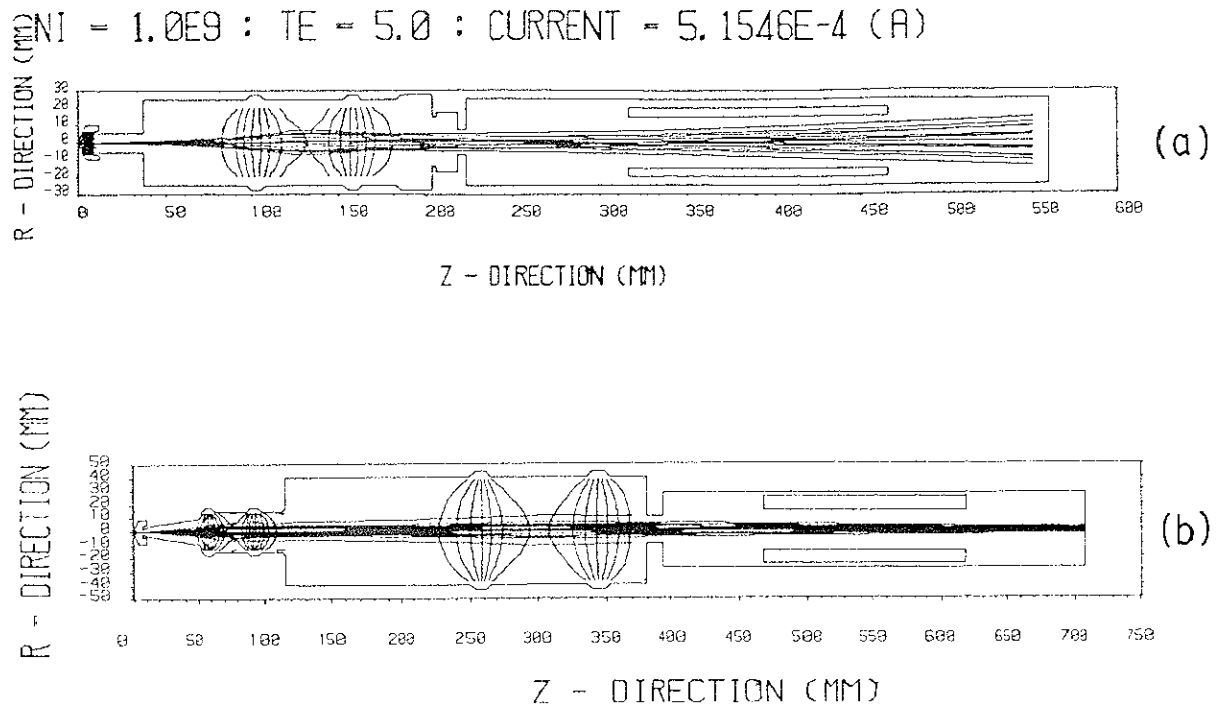


図3.10 イオン源からE×B型質量分離器までのシミュレーション結果。(a)はイオン源と質量分離器との間に1個のレンズを設けた場合、(b)は2個のレンズを設けた場合

すなわち、これらのシミュレーションから、この系ではレンズを2個設ける必要がある。

図3.11は電極形状のシミュレーション結果を示す。 $\phi 20\text{mm}$ （点線の円）内に均一な電界が形成できるように、コの字形電極を採用した。また、ビーム集束用の電圧を印加した場合も考慮して、両方の電極は非対称にした。この結果は正電極に $+1500\text{V}$ 、負電極に $+500\text{V}$ 印加した場合で、点線内にほぼ均一な電界、すなわち、等間隔の等電位線が得られている。

図3.12は電極を平行平板として、両電極に $+1\text{kV}$ 印加し、三次元モデルで解析した場合の結果を示す。図3.12(a)は電極に対して水平方向から見た結果で、ビームが集束している。また、図3.12(b)は電極に対して垂直方向から見た結果であり、空間電荷の作用でビームが広がる傾向にある。この結果から、 $E \times B$ の電極にバイアス電位を印加することにより質量分離能力を向上させられることがわかった。

図3.13は電極に偏向電位とバイアス電位を同時に印加した場合の解析結果である。正電極に $+1200\text{V}$ 、負電極に $+800\text{V}$ の場合で、偏向したビームも集束していることがわかる。

図3.14は質量スペクトルを示す。ビームエネルギーは 10keV で、実線は膜堆積チャンバー内の第三レンズを作用させた場合で、破線は第三レンズを作用させなかった場合の結果である。この時の磁束密度は 4kG で一定に保ち、電界を可変にした。分離能は1.5であるが、 Ta^+ イオンビームと Ar^+ イオンビームおよび不純物イオンビーム（ Fe 、 Ni 等）との分離は十分におこなわれるので性能としては問題がない。

(d) イオン減速電極系

質量分離器の出口までのビーム条件は、 Ar^+ イオン電流 $200\mu\text{A}$ 、イオンエネルギー 12keV である（イオン光学系は Ar^+ イオン電流 1mA 、イオンエネルギー 15keV のとき最適となるように設計してある）。減速系のシミュレーション条件は、質量分離器の出口でのビームベクトルを保存し、 Ta^+ イオン電流 10 および $20\mu\text{A}$ 、最終イオンエネルギー 50eV とした。この減速系の特徴は

- ① 低速イオンビームの空間電荷による発散を抑えるため、および基板面でのビーム形状を制御するため、減速レンズのすぐ手前に集束レンズを配置させてあり、
- ② ビーム中に含まれた電子が減速電界の手前で除去されるように、電子抑制電極を設けたこと、

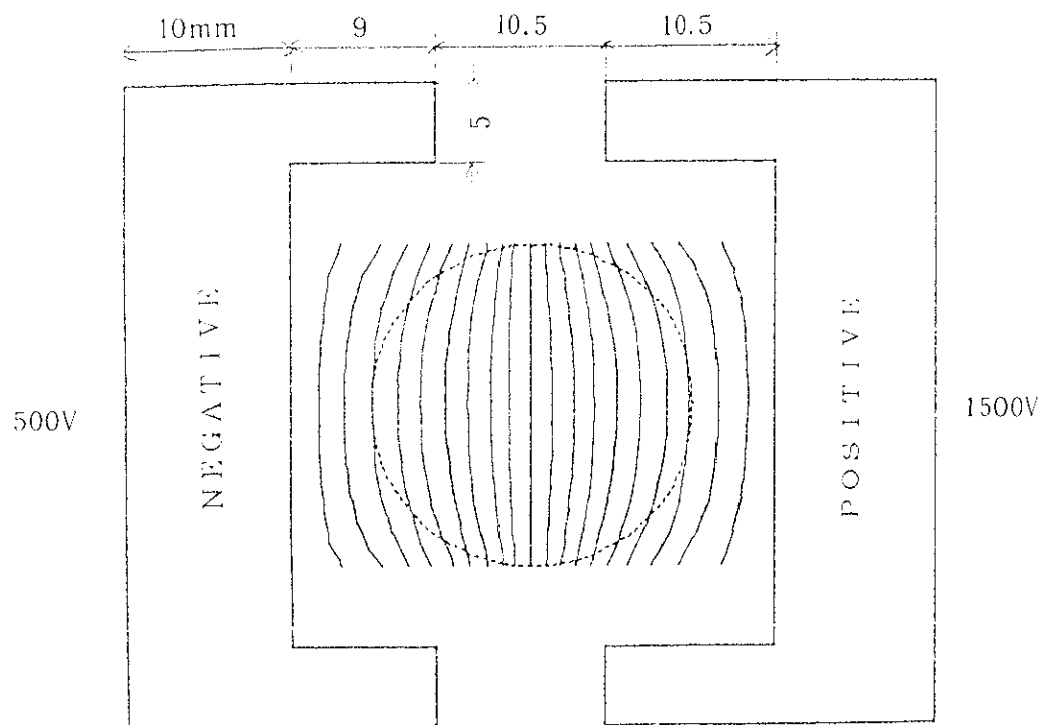


図3.11 電極形状のシミュレーション結果

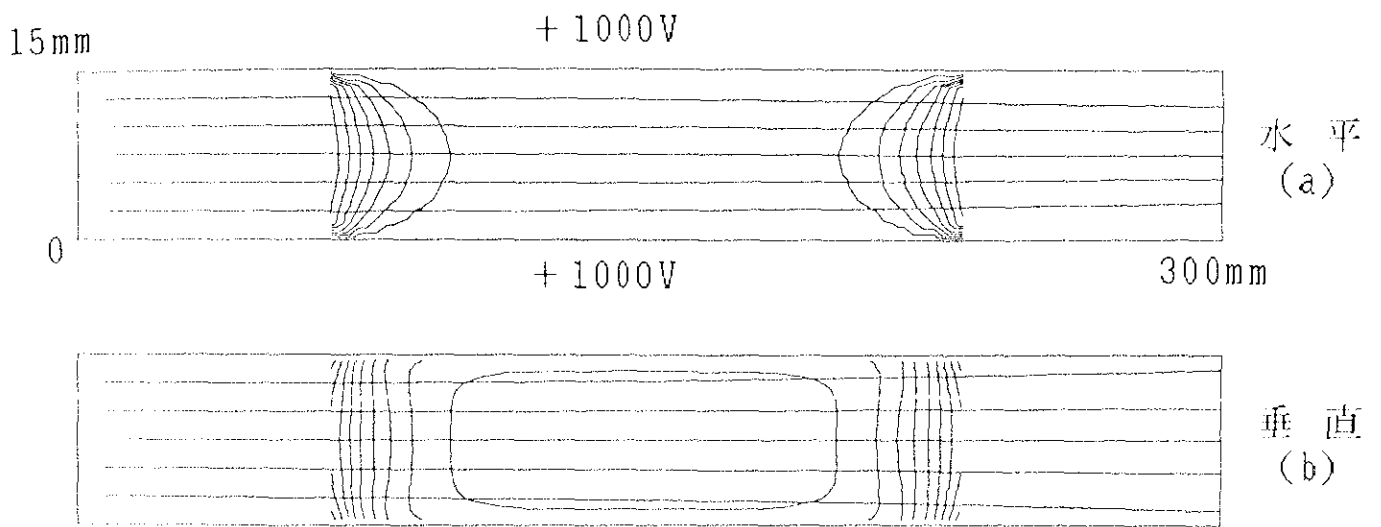


図3.12 電極を平行平板として、両電極に+ 1 kV印加し、三次元モデルで解析した場合の結果。(a)は電極に対して水平方向から見た結果、(b)は電極に対して垂直方向から見た結果

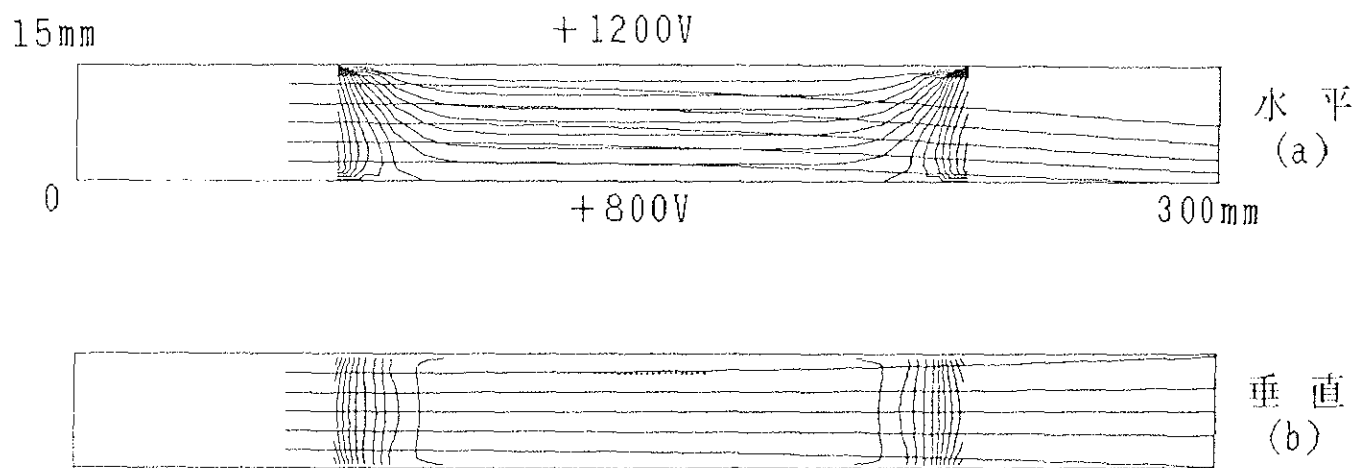


図3.13 電極に偏向電位とバイアス電位を同時に印加した場合の解析結果

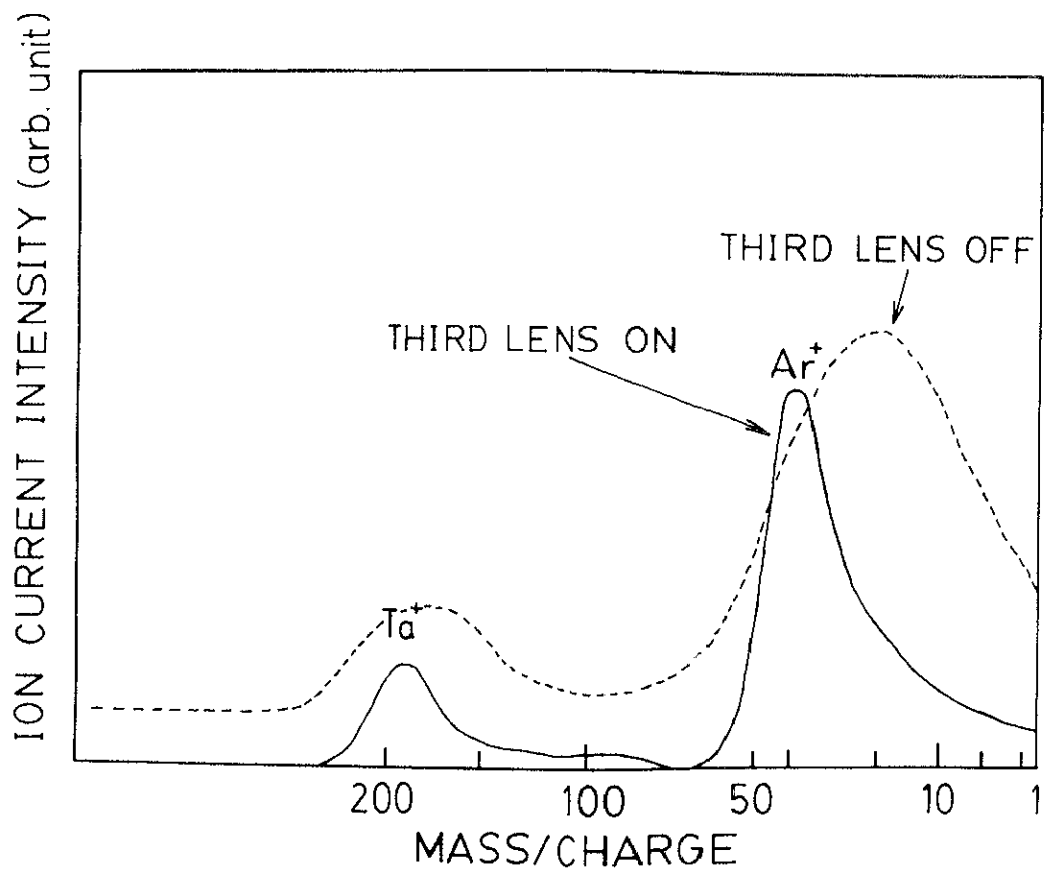


図3.14 質量スペクトル

である。

図3.15はTa⁺イオン電流10 μ Aのシミュレーション結果で、レンズ電圧は(a)10kV、(b)9kV、(c)8kV、(d)7kVである。図3.16はTa⁺イオン電流20 μ Aで、レンズ電圧は(a)10kV、(b)9kV、(c)8kV、(d)7kVである。20 μ A以下では減速空間での空間電荷効果によるビーム軌道の変化はほとんどない。また、レンズ電圧が9kV以上では基板手前でビームのクロスオーバーが起こり、クロスオーバー点で空間電荷による発散が強くなるため、基板面で均一ビームが得られにくい。8kV以下では平行ビームに近くなり、均一性よくなるが、7kV以下では電極にビームが当たり、スパッタ物が膜中に混入する可能性がでてくる。これらの結果から、レンズ電圧が8kVから7kVまでの間で、かなり均一なビームが得られる可能性があることがわかる。

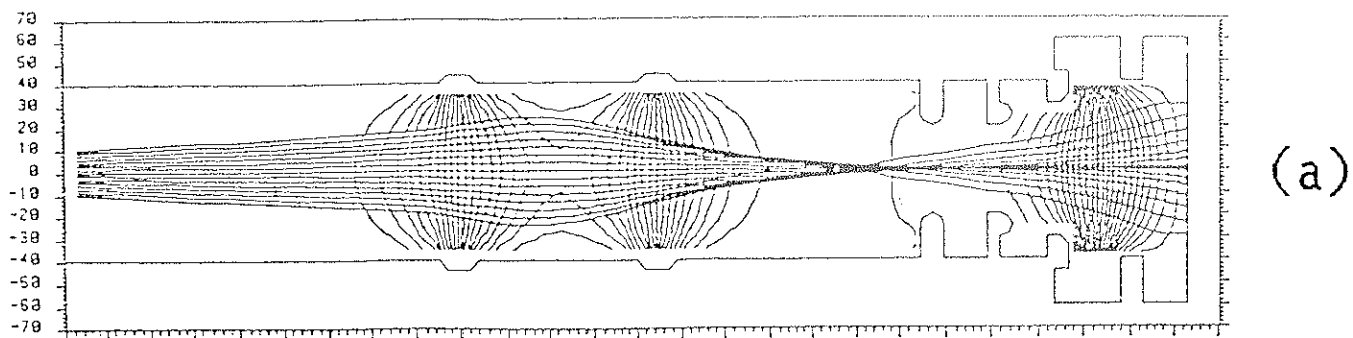
シミュレーション結果をもとに設計した減速器を図3.17に示す。基板台には6インチウエハが取り付けられる。この減速器を用いたタンタル酸化膜の堆積実験より次の性能を得ることができた。

- (1) 最終イオンエネルギー40eV以上では、イオン引出電極から基板までのイオンビーム輸送効率は80%以上であった（ただし、イオン引き出し孔 ϕ 2mm）。
- (2) 最終イオンエネルギー10eV以下では、膜形成は不可能であった。
- (3) 電極等からのスパッタリングによる不純物は、オージェ電子分光法の分析結果からは、膜中に含まれていなかった。

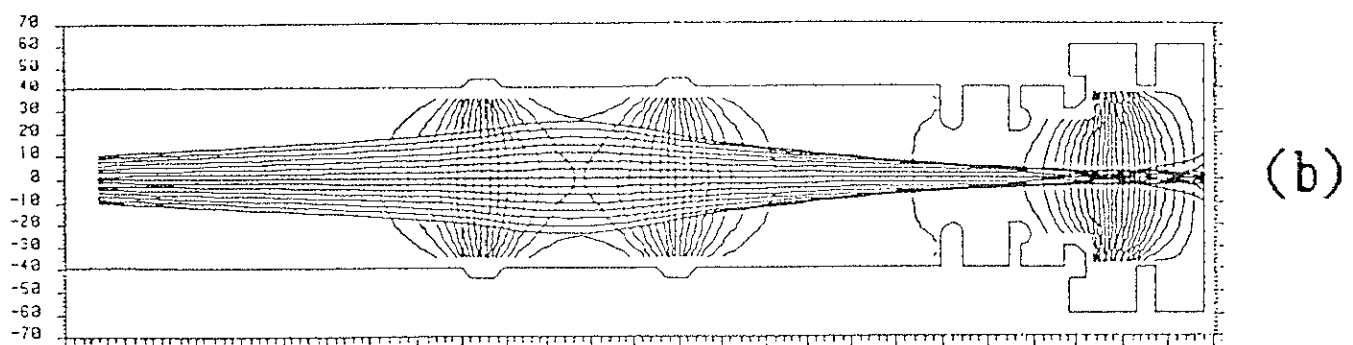
3.2.2 実験結果

イオン源はPIG構造小型マイクロ波金属イオン源で、放電維持用ガスはアルゴンであり、金属ターゲットはタンタルである。イオン引き出し孔は ϕ 3mm、引き出しギャップ（イオン引き出し孔とイオン引出電極の先端との距離）は5.5mmである。IBD装置の特性は、第三レンズの後方に設置されたファラデーカップでイオン電流を検出することによっておこなった。ファラデーカップはビーム制限電極、電子抑制電極、およびイオンコレクターで構成されており、ビーム制限電極の孔は ϕ 24mmで、電子抑制電極は-80V印加されている。

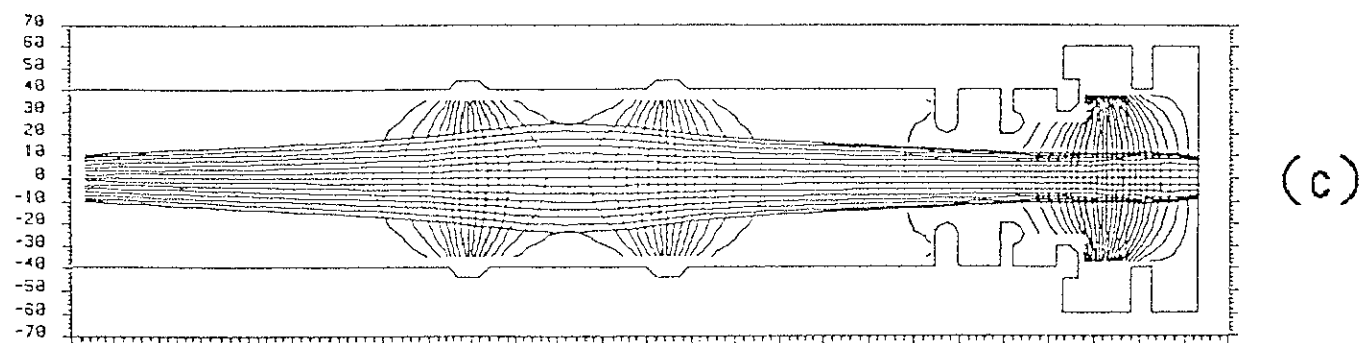
図3.18はイオン引き出し電圧に対する引き出されるAr⁺イオン電流を示す。イオン源の入力マイクロ波電力は37Wで、プラズマ生成室内のガス圧力は 6.2×10^{-3} と 1.6×10^{-3} Torr



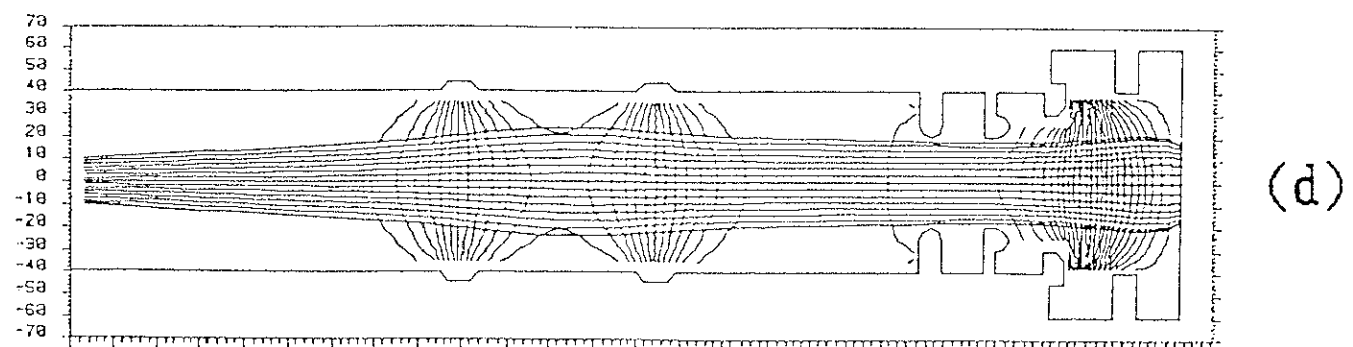
700 720 740 760 780 800 820 840 860 880 900 920 940 960 980 1000 1020 1040 1060 1080 1100 1120 1140 1160 1180 1200 1220



650 710 730 750 770 790 810 830 850 870 890 910 930 950 970 990 1010 1030 1050 1070 1090 1110 1130 1150 1170 1190 1210

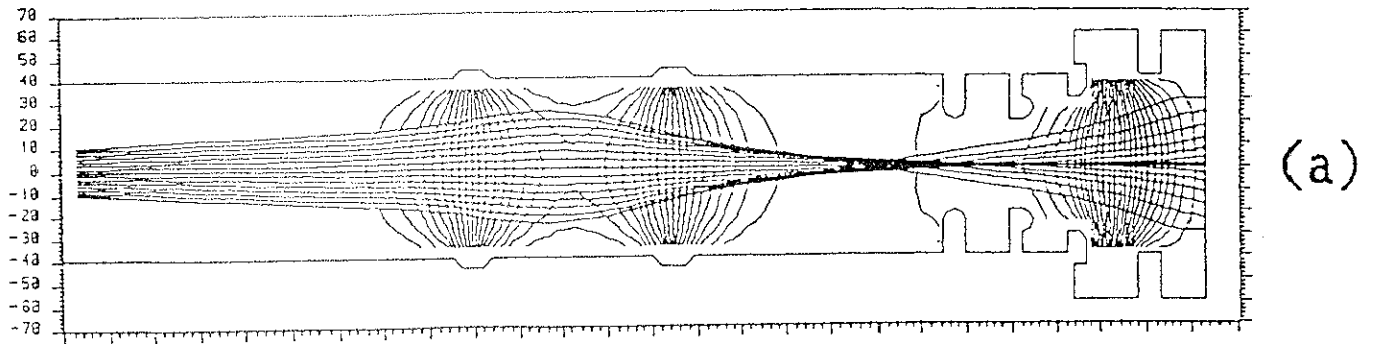


700 720 740 760 780 800 820 840 860 880 900 920 940 960 980 1000 1020 1040 1060 1080 1100 1120 1140 1160 1180 1200 1220

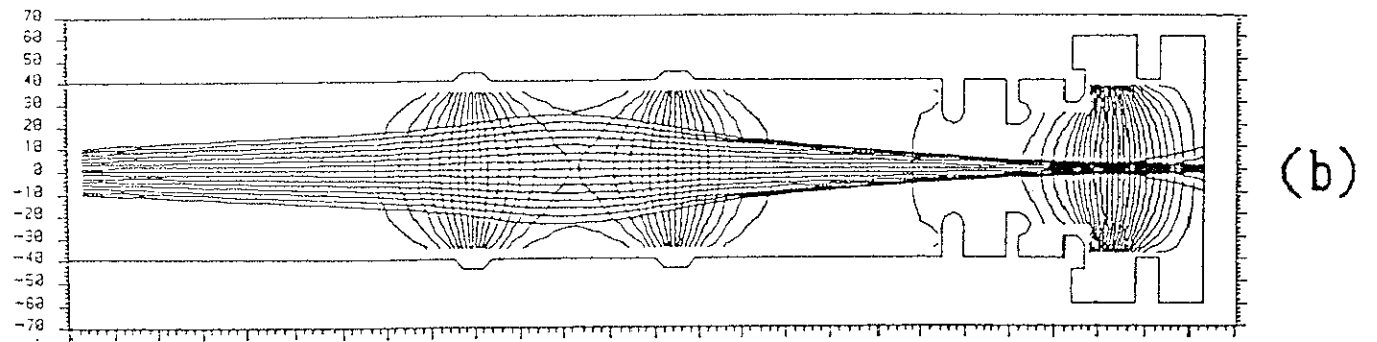


700 720 740 760 780 800 820 840 860 880 900 920 940 960 980 1000 1020 1040 1060 1080 1100 1120 1140 1160 1180 1200 1220

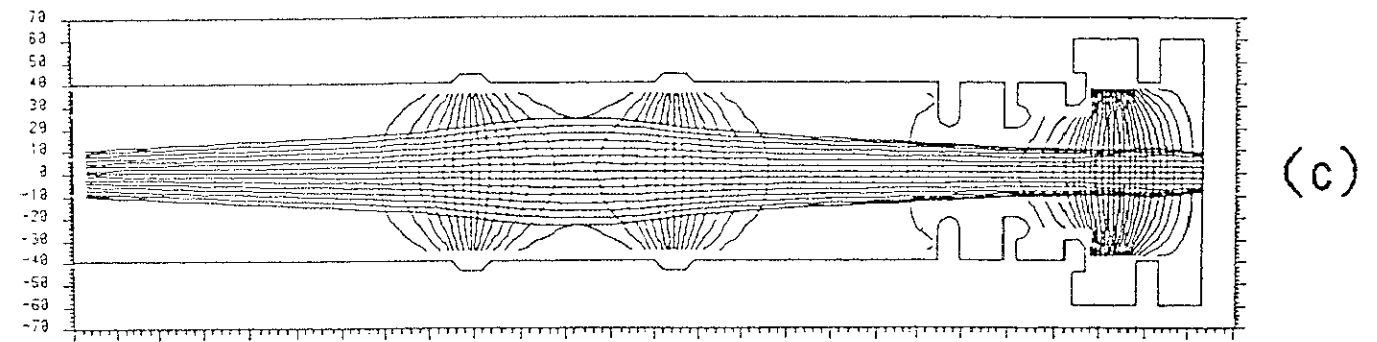
図3.15 Ta⁺イオン電流10 μ Aのシミュレーション結果で、レンズ電圧は(a)10kV、(b)9 kV、(c)8 kV、(d)7 kV



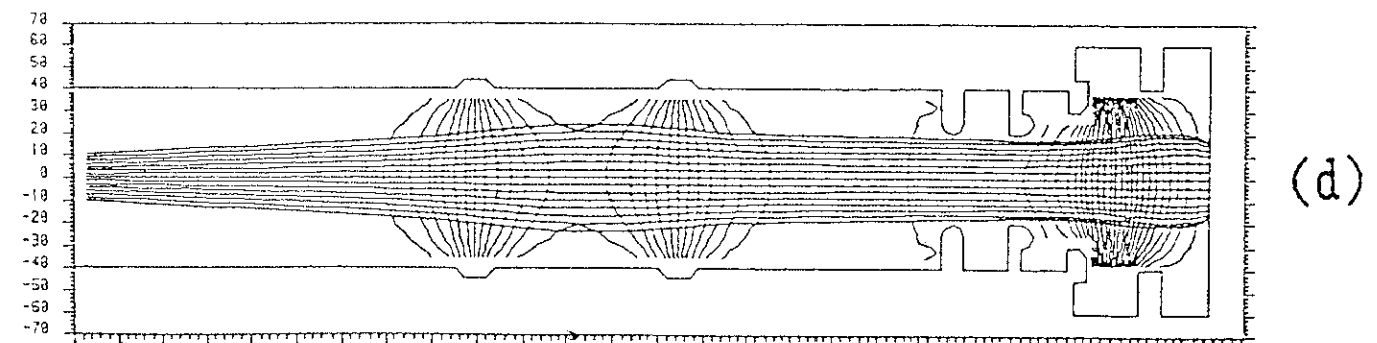
700 720 740 760 780 800 820 840 860 880 900 920 940 960 980 1000 1020 1040 1060 1080 1100 1120 1140 1160 1180 1200 1220



700 720 740 760 780 800 820 840 860 880 900 920 940 960 980 1000 1020 1040 1060 1080 1100 1120 1140 1160 1180 1200 1220



700 720 740 760 780 800 820 840 860 880 900 920 940 960 980 1000 1020 1040 1060 1080 1100 1120 1140 1160 1180 1200 1220



700 720 740 760 780 800 820 840 860 880 900 920 940 960 980 1000 1020 1040 1060 1080 1100 1120 1140 1160 1180 1200 1220

図3.16 Ta⁺イオン電流20 μ Aのシミュレーション結果で、レンズ電圧は(a)10kV、(b)9 kV、(c)8 kV、(d)7 kV

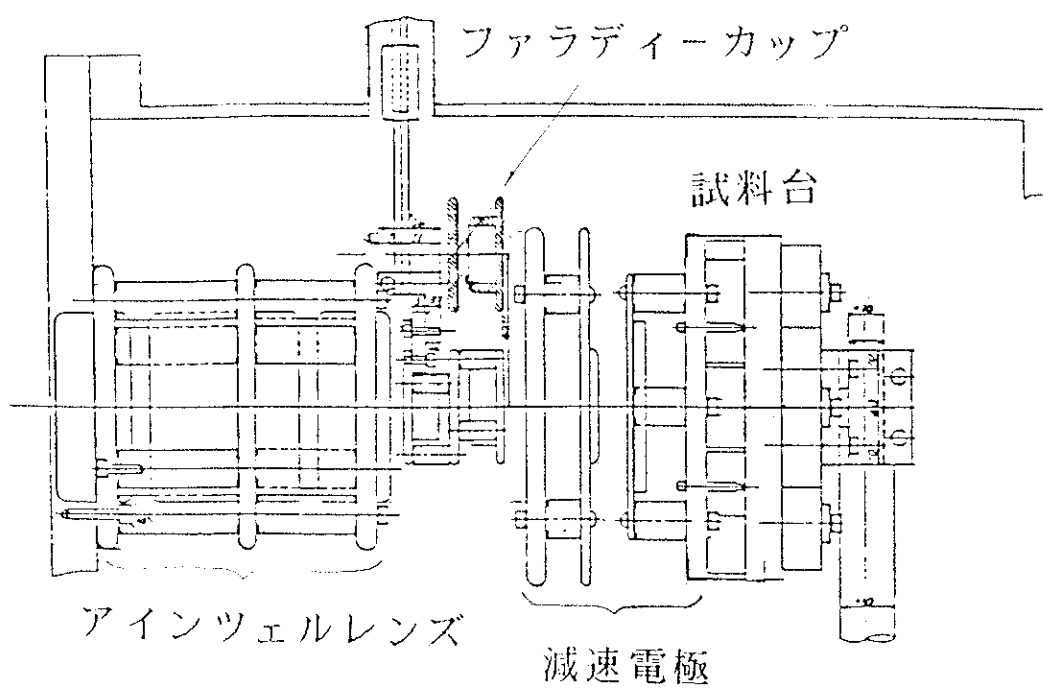


図3.17 シミュレーション結果をもとに設計した減速器

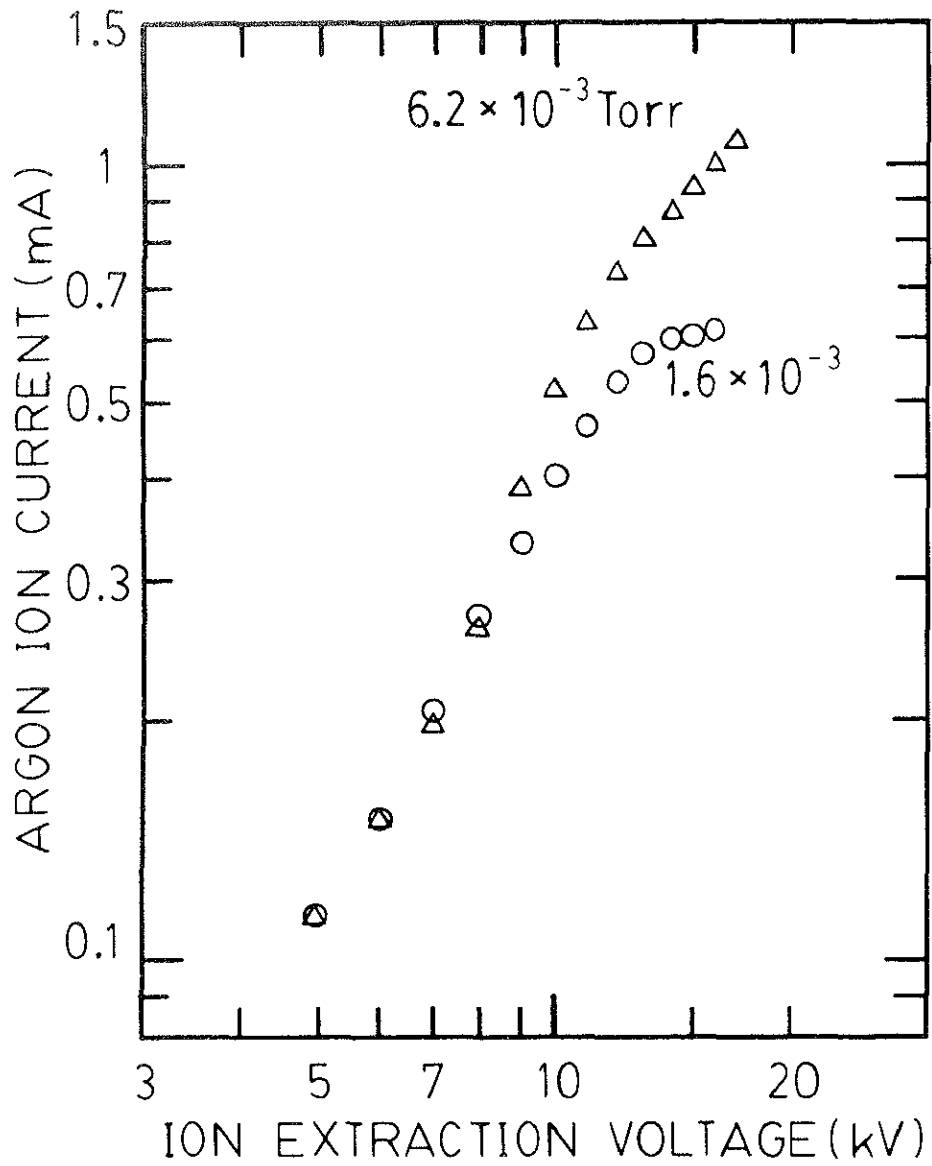


図3.18 イオン引き出し電圧に対する引き出されるAr⁺イオン電流

である。イオン輸送効率（第三レンズ後のイオン電流／第一レンズ後のイオン電流）はイオン引き出し電圧が10～15kVで約0.8であった。

図3.19はイオン源チャンバーのガス圧力に対するTa⁺イオン電流を示す。このガス圧力領域では膜堆積チャンバー内のガス圧力を10⁻⁷Torr台以下に保つことができる。

表3.1はこのIBD装置で得ることができる最大のイオン電流とそのときのイオン束を示す。イオン束はイオンエネルギーが100eVのときの値である。イオン束が2×10¹⁴ ions/(cm²・s)のとき膜成長速度は約0.6Å/sである。また、このときのガス圧力を1×10⁻⁷Torrとすると、ガス束は5.3×10¹³個/(cm²・s)となる。

表3.1 最大イオン電流とそのときのイオン束

	Maximum ion current (μA)	Ion flux (×10 ¹⁴ ions/(cm ² ・s))
Ta ⁺	115	1.6
W ⁺	155	2.4
Mo ⁺	90	1.2

3.3 ダブルイオンビーム膜堆積装置

3.3.1 構成と設計指針

薄膜の化学量論的組成（ストイキオメトリー）を高度に制御するには、構成する元素のすべてをイオンビームとして基板に供給し、イオン電流量をコントロールしながら付着させるのが理想的である。例えば、酸化タンタルを形成するには、タンタルをイオンビームとして基板に照射すると同時に、酸素もイオンビームとして別方向から照射する必要がある。しかしながら、二方向からのビームを同時に減速させることは今まで報告されていなかった。これは、減速時の電界の干渉によりビームが曲げられたりするので、減速器の設計が困難なためであった。そこで、コンピュータシミュレーションを駆使して新しい概念の減速器を開発したので、以下にその設計指針と性能を示す。

図3.20はダブルイオンビーム膜堆積（double ion beam deposition; 以下DI BDと略す）装置の構成を示す。この装置は2つのビームライン、金属イオンビームライン（metal ion beam line; 以下MI BLと略す）とガスイオンビームライン（gas ion beam line; 以下GI BLと略す）を組み合わせたものである。

MI BLは金属イオン源、質量分離器、それにイオンビーム減速器で構成されており、

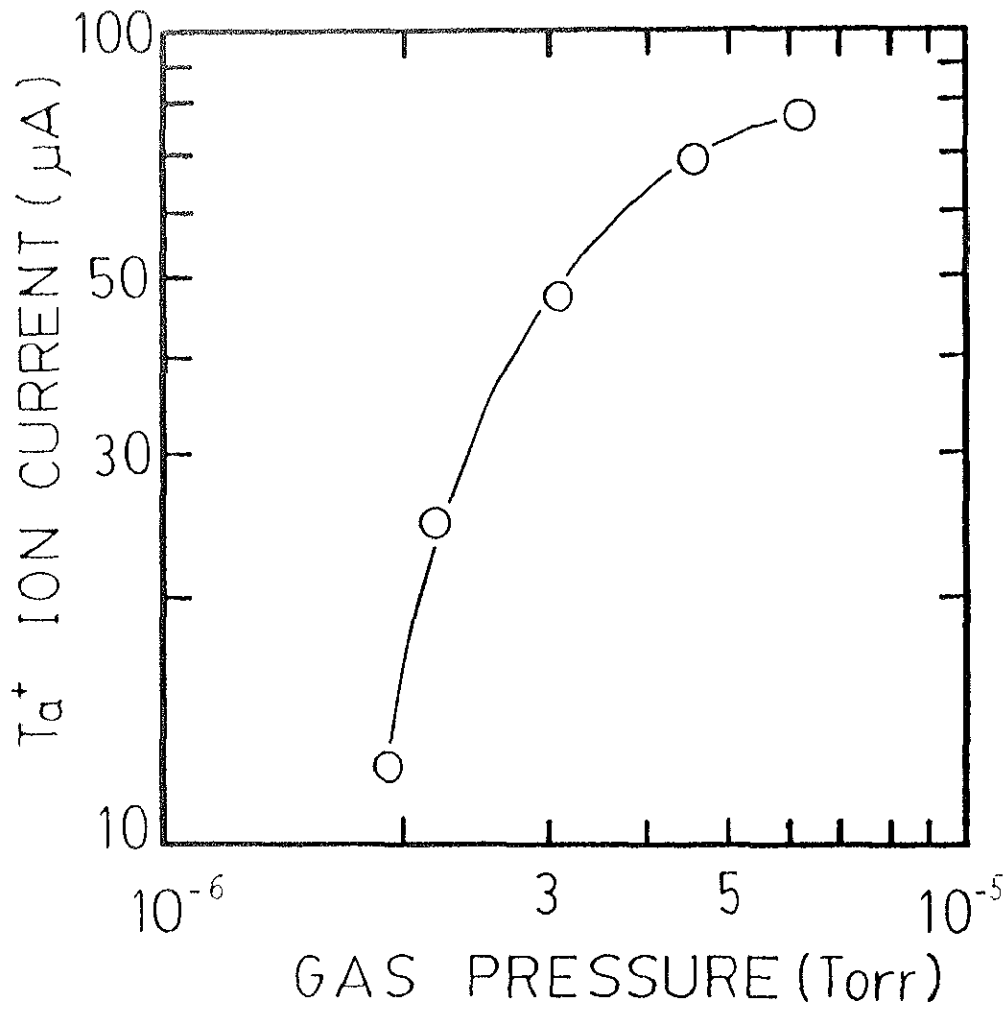


図3.19 イオン源チャンバーのガス圧力に対するTa⁺イオン電流

三つの真空チャンバーからなっている。第一チャンバーは金属イオン源チャンバーで、イオン源 (metal ion source)、イオン引き出しと集束の機能を兼備えた第一レンズ (extraction/focussing lens)、および第二レンズ (second lens) が含まれている。第二チャンバーはE×B型質量分離器 (Wien filter) である。第三チャンバーは超高真空用の膜堆積チャンバーで、第三レンズ (final focussing lens)、イオンビーム減速器 (deceleration system)、それに試料台 (substrate) が含まれている。金属イオン源チャンバーは油拡散ポンプで排気され、有効排気速度は1300 l/sである。膜堆積チャンバーは二段のターボ分子ポンプで排気され、有効排気速度は450 l/s、到達真空度は 8×10^{-9} Torrであり、イオン源を動作させたときのガス圧力は 10^{-7} Torr台である。イオン輸送距離は約1.2mで、イオン源から質量分離器の入口までが400mm、質量分離器が340mm、質量分離器の出口から試料台までが500mmである。

G I B Lはガスイオン源とイオンビーム減速器で構成されており、二つの真空チャンバー、すなわち、ガスイオン源チャンバーおよびM I B Lと共用の膜堆積チャンバーからなっている。ガスイオン源チャンバーはイオン源、およびイオン引き出しと集束の機能を兼備えた第一レンズが含まれており、ターボ分子ポンプで排気され、有効排気速度は300 l/sである。第二レンズ (final focussing lens) とイオンビーム減速器は膜堆積チャンバーの内部にあり、減速器の一部と試料台はM I B Lと共用である。イオン輸送距離は650mmである。膜形成は、低エネルギーの金属イオンビーム (数十～数百eV) と低エネルギーの反応性ガスイオンビーム (数十～数百eV) を試料に同時照射することによりおこなわれる。

金属イオン源はP I G構造小型マイクロ波金属イオン源を用いた。ガスイオン源はP I G構造小型マイクロ波金属イオン源を改良した小型マイクロ波E C R型¹⁴⁾を用いた。図3.21はガスイオン源の構造を示す。プラズマ生成室は径が26mm、有効長さが20mmである。磁極の中央は875Gでマイクロ波周波数に対してE C R条件を満たしている。このイオン源はP I G放電ではなく、マイクロ波E C R放電のみで動作させた。また、磁極の先端は窒化ボロンで覆い、イオンの消滅が少なくなるようになっている。アンテナはステンレス (S U S 304) 線を用いた。ステンレスは酸素プラズマにさらされると表面に薄い酸化皮膜が形成されるため、それが保護膜となり腐食することがない (付録C.2を参照のこと)。

D I B Dではイオンビーム減速器の設計が重要である。減速器設計の困難な点は、二方向から試料に入射してくる高速イオンビーム (十数keV) を試料の直前で減速 (数十～数百eV)

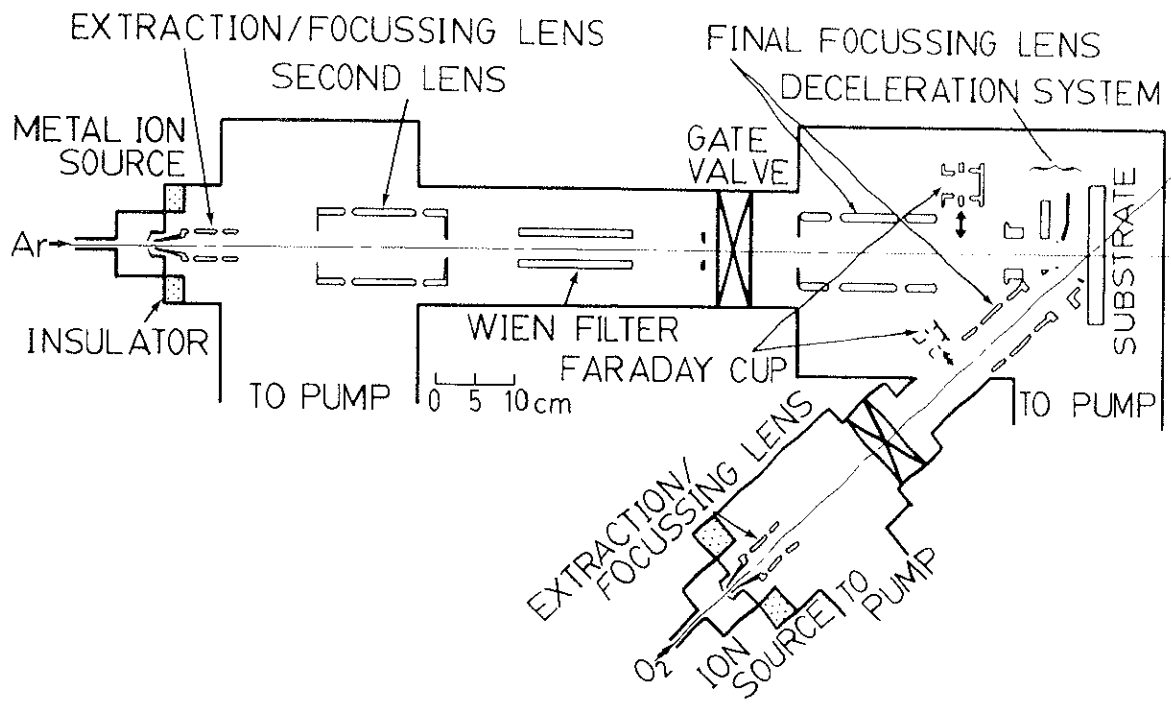


図3.20 ダブルイオンビーム膜堆積装置の構成

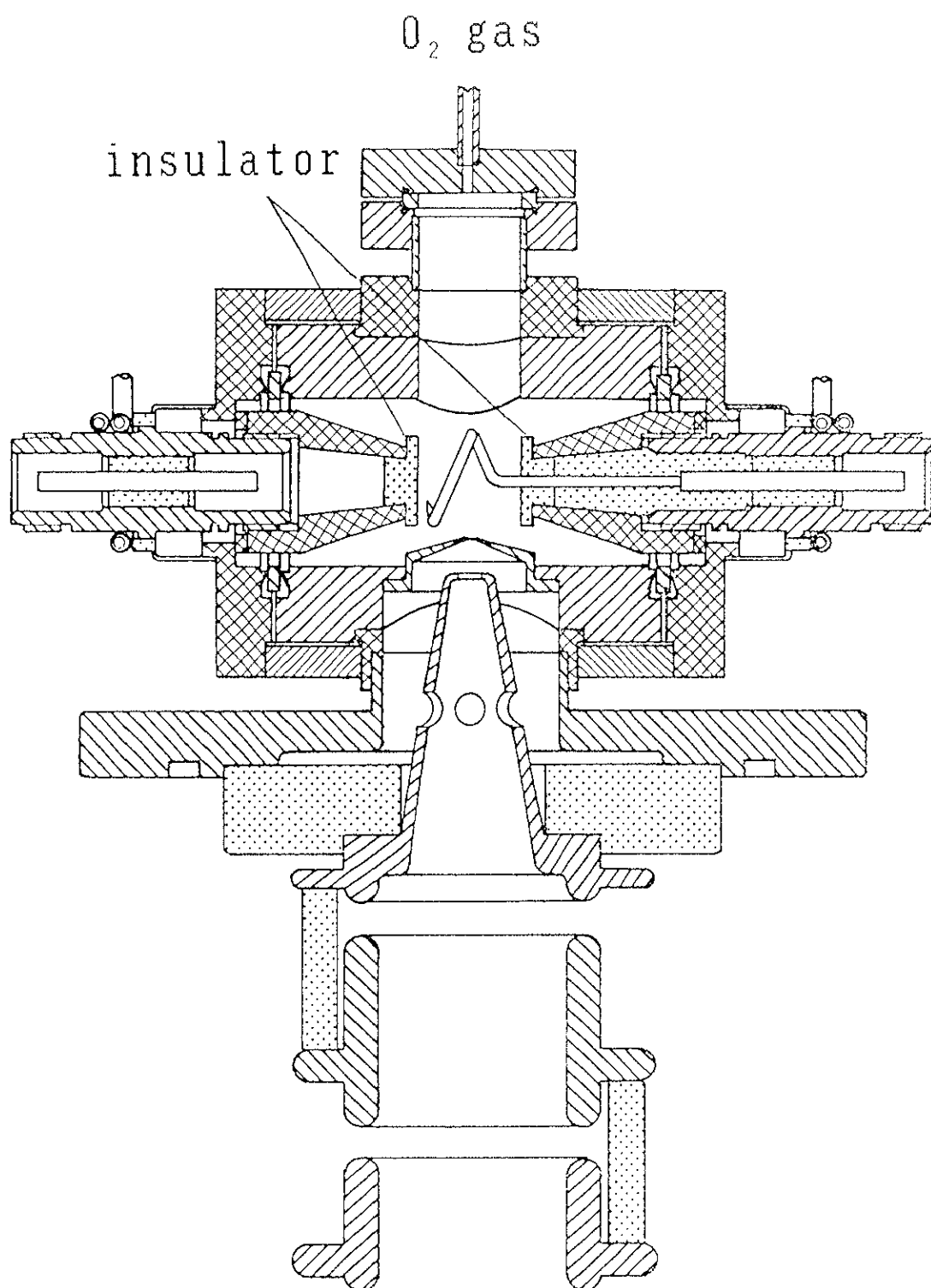


図3.21 ガスイオン源の構造

し、試料表面で重ね合わせること、および同時に膜堆積が可能なビーム量（数十 μA 以上）を得ることである。この減速器を設計するには、正確なイオンビーム軌道の解析が必要である。そこで、境界要素法によるイオンビーム軌道のシュミレーションソフトを用いて、イオンビーム減速系の最適設計をおこなった。イオン源の出口から減速系の手前までは、MIBLとGIBLを別々の軸対称モデルとして解析をおこなった。また、二本のビームが重なる減速器では、手前までの軸対称ビームのベクトルは保存したまま三次元モデルとして解析することにより、輸送系全体のビームラインのシュミレーションをおこなった。

図3.22(a)は減速系のシュミレーション結果を示す。シュミレーション条件は12keVの Ta^- と O^+ イオンビームを減速し最終エネルギーを50eVとし、このときのイオン電流は Ta^+ が50 μA 、 O^+ が200 μA である。イオンビームの入射角は試料台に対して、 Ta^+ が 90° 、 O^+ が 47° である。この結果から、減速電界を形成する電極が両イオンビームのそれぞれに対して垂直な場合、イオンが試料台に到達していないことがわかる。これは、試料台側の漏れ電界が相互作用するために、電界の乱れが発生し、等電位線に対して斜めから入射してくるイオンビームが電界の障壁を乗り越えられないので、イオンビームが基板の手前で曲げられるためである。

図3.22(b)は電極を両イオンビームに対してそれぞれ 110° 傾けた場合のシュミレーション結果を示す。シュミレーション条件は図3.22(a)のときと同じである。この結果では、ビームは試料台に到達するが、両イオンビームが重ならないことを示している。すなわち、ビームに対する電極の角度をそれぞれ独立に変えて、試料台直前の電界を補正する必要がある。

図3.22(c)は電界補正をおこなった場合のシュミレーション結果を示す。この結果、両イオンビームが重なっているのがわかる。このビーム電界とエネルギーでは、この電極形状が最適であることを示している。しかし、イオンエネルギーや電流量が変わればビーム軌道が変化し、重ね合わせが起こらなくなる。

これらのシュミレーション結果を考慮して、ダブルイオンビーム用の減速器を開発した。図3.23は減速器の断面図を示す。減速電界を形成する電極はビーム電位電極（earth electrode）と高電位電極（high voltage electrode）で構成されている。ビーム電位電極は負の1kVにしてあり、ビーム中の電子を減速電界（電子に対しては加速電界）の手前で除去する役目も兼ねる。高電位電極は試料台と同じ電位でイオンビーム最終エネルギーを決めるものである。この高電位電極は屏風型で、両イオンビームの入射方向が成す角度の二等分

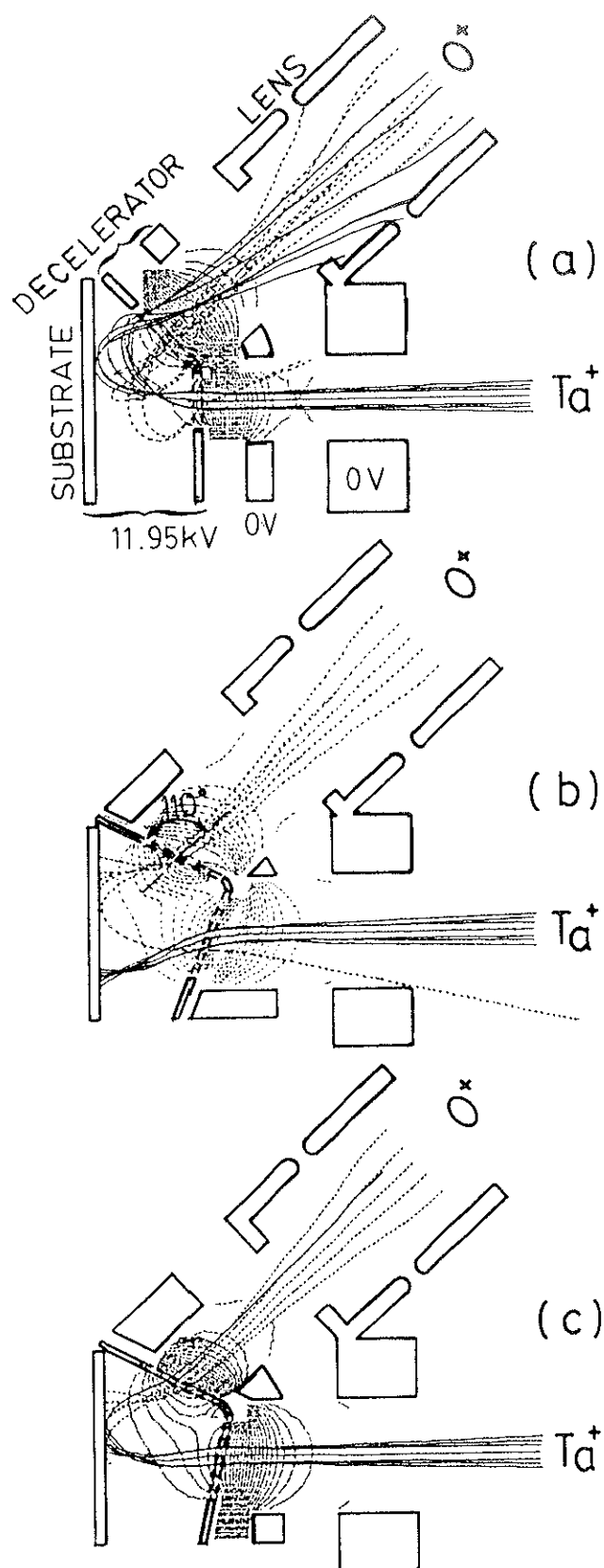


図3.22 減速系のシミュレーション結果

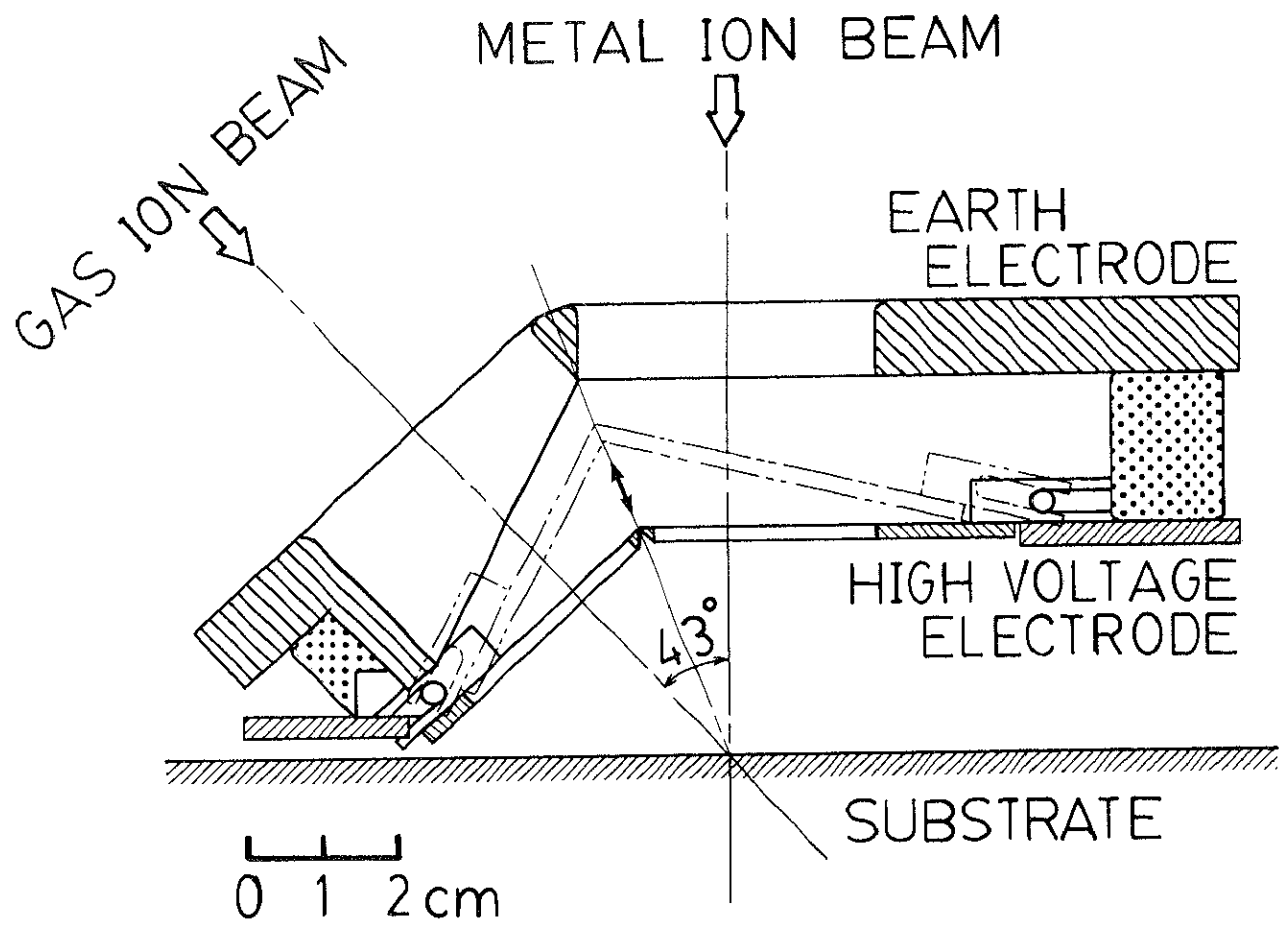


図3.23 ダブルイオンビーム用の減速器

線に沿って動かすことができる。

3.3.2 実験結果

(a) 酸素ビームライン

イオンビームの検出は、M I B Lでは第三レンズの後方に設置されたファラデーカップで、G I B Lでは第二レンズの前方に設置されたファラデーカップでイオン電流を検出することによりおこなうことができる。ファラデーカップはビーム制限電極、電子抑制電極、およびイオンコレクターで構成されており、電子抑制電極は -80V で、ビーム制限電極の開孔はM I B Lでは $\phi 24\text{mm}$ で、G I B Lでは $\phi 12\text{mm}$ である。

図3.24はG I B Lでのプラズマ生成室のガス圧力に対する酸素イオン電流を示す。このときの酸素イオン電流は減速電極を電子抑制電極として、基板台をイオンコレクターとして検出した。イオン源の入力マイクロ波は 50W と 60W であり、イオンエネルギーは 8.5kV である。酸素イオンビームには O^+ と O_2^+ の両方のイオンが含まれており、 O_2^+ が60%である¹⁴⁾。この結果から、ガス圧力に対するイオン電流の依存性がないことがわかる。この理由は、イオン輸送系のレンズ、またはドリフトチューブにビームが制限されているためであると考えられる。

(b) ビームプロファイル

基板上でのビームプロファイルは、M I B Lからは Ta^+ イオンビーム、G I B Lからは酸素イオンビーム (O^+ 、 O_2^+) の電流量を別々に測定した。図3.25はイオンビームの検出器を示す。ビーム電流の検出は、減速電位が印加された基板の $\phi 2\text{mm}$ の孔にアース電位のイオン引き出し電極を設け、その直後にファラデーカップを設置して、全体を大気中からX-Y方向に動かすことによりおこなった。

図3.26はイオンエネルギーを変化させた時のX方向のビームプロファイルを示す。これは、レンズ電圧を調整して、タンタルと酸素ビームの重なりが最大となった時のプロファイルであり、(a)から(d)までレンズ電圧は一定にしてある。

図3.27は6インチの基板上に入射してくるイオンビーム電流とイオンエネルギーの関係

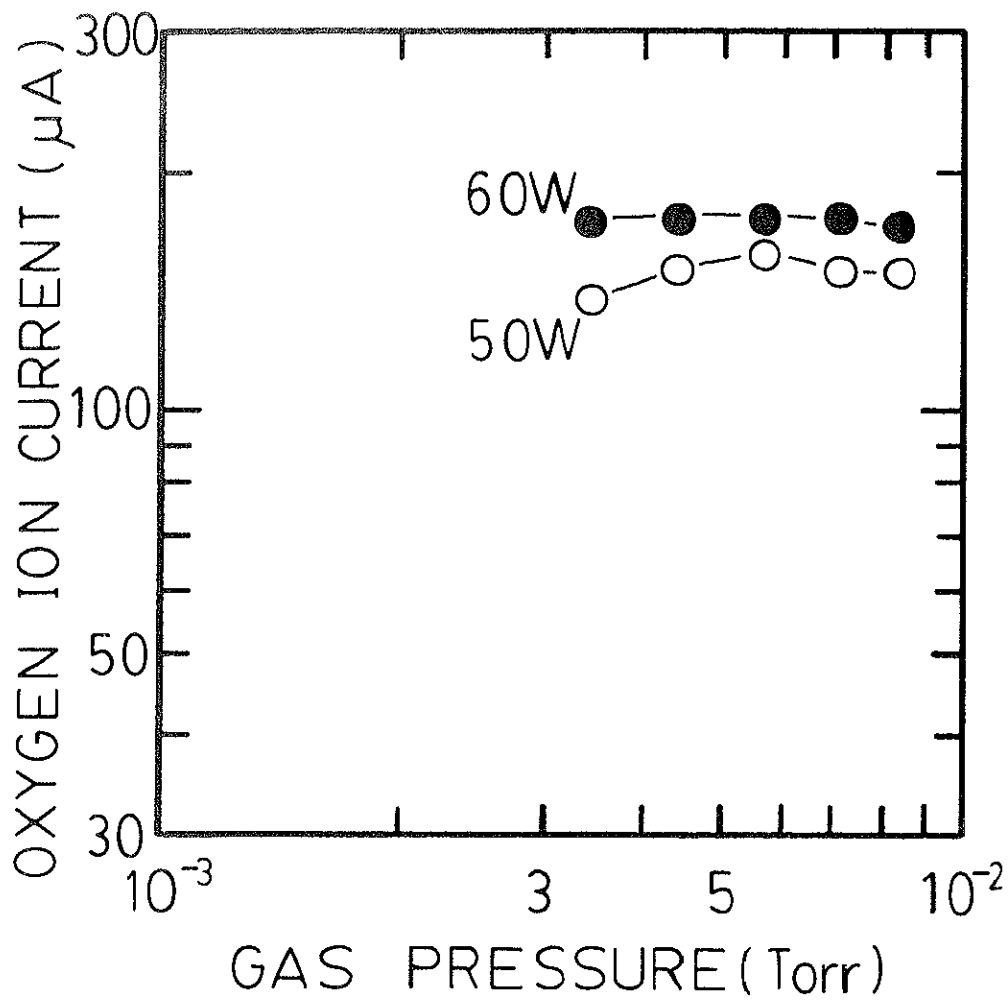


図3.24 G I B Lでのプラズマ生成室のガス圧力に対する酸素イオン電流

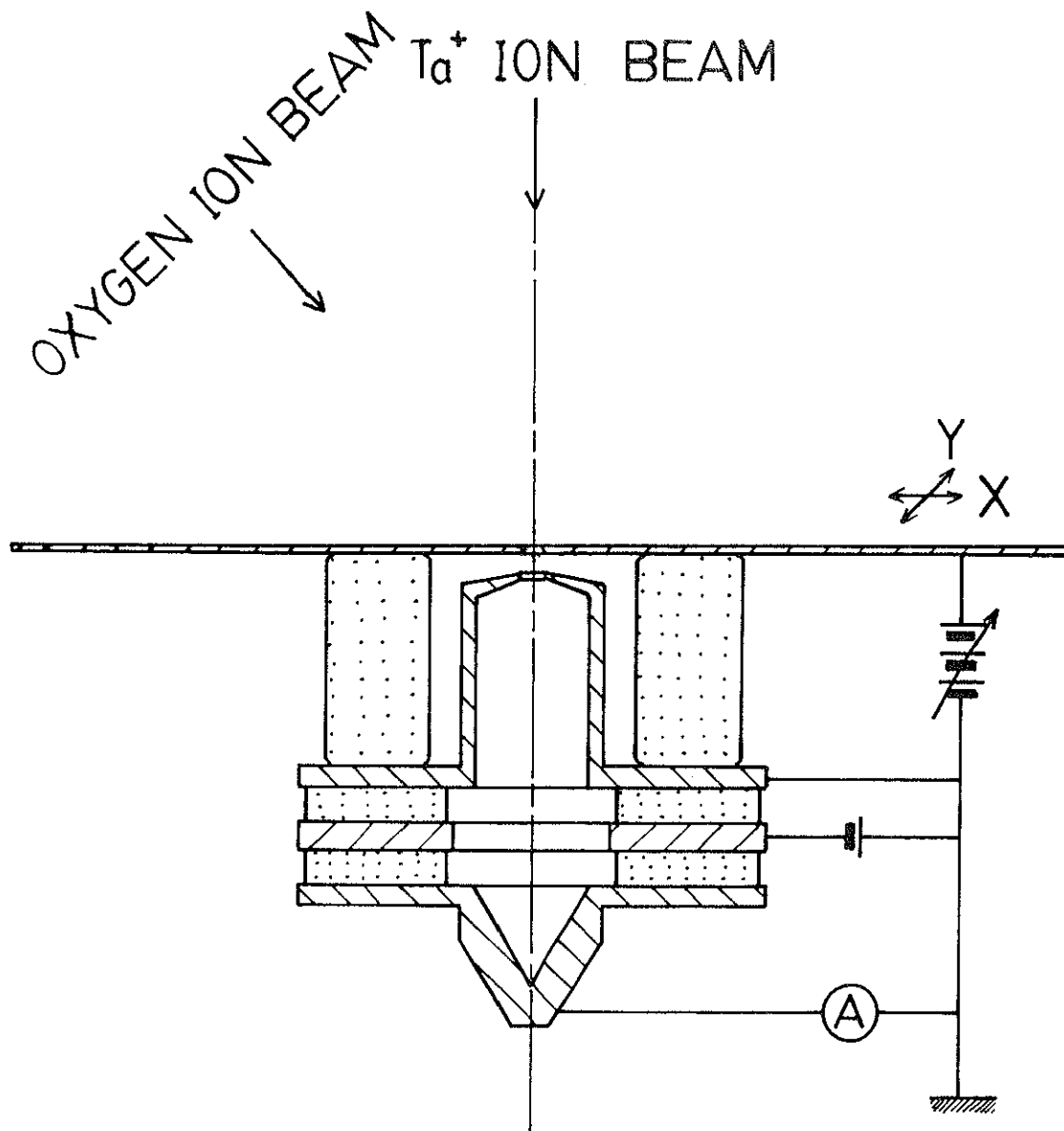


図3.25 イオンビームの検出器

を示す。タンタルイオンビームは180eV以上で一定になっているが、酸素は200eV以上でもまだビームが基板に到達せずにある程度戻されている。これは、酸素ビームは斜めから入射するため、減速電界の歪みの影響を受けやすいためである。

図3.26(c)はイオンエネルギーが100eVの時のX方向のビームプロファイルを示す。MIBLでは減速電極直前のアインツェルレンズ（第三レンズ）の電位を変化させることにより、ビーム強度およびピーク位置を変えることができる。GIBLに関しては、ビームプロファイルは減速電極直前の第二レンズでも多少変化するが、第一レンズにより大きく変わる。これはGIBLの距離が短いために、第一レンズの焦点が基板上で合うためである。

図3.28はイオンエネルギーが100eVの時のY方向のビームプロファイルを示す。両ビームとも中心軸よりもX方向の酸素イオン源側にずれる傾向にある。酸素イオンビームのプロファイルのピークは約6 mmずれており、またTa⁺イオンビームはほぼ中央にピークを持つが、レンズ電圧により0～2 mmずらすことができる。これらの結果はシミュレーションとよく一致する。均質なTa₂O₅を得るためには、タンタルと酸素の重なり部分を多くすればよいので、タンタルビームラインの第三レンズの電圧を変化させることによりタンタルを酸素側にずらせる。Y方向に関しては、GIBLのドリフトチューブが細いために、イオンビームが壁面に当たらないように第一レンズで透過率が最大になるように設定するので、酸素イオンの均一性をあまりよくすることはできない。しかし、MIBLはE×B質量分離器でY方向にビームを振ることができるので、タンタルイオンを酸素イオンに合わせるのが得策である。

(c) エミッタンス

エミッタンスはイオン源から引き出されたイオンビームの良否を判定する量として用いられ、ビームに備わった不変量として重要である。エミッタンス ε_2 は、ビームの径方向距離 x を横軸に、位置 x におけるビームの拡がり角 $\alpha(x)$ を縦軸に描かれた位相図の面積を π で割った量であり、

$$\varepsilon_2 = (1/\pi) \int \alpha(x) dx \quad (3-1)$$

と表わせる¹⁵⁾。外力による加速、減速、集束等の如何にかかわらず不変量として取り扱

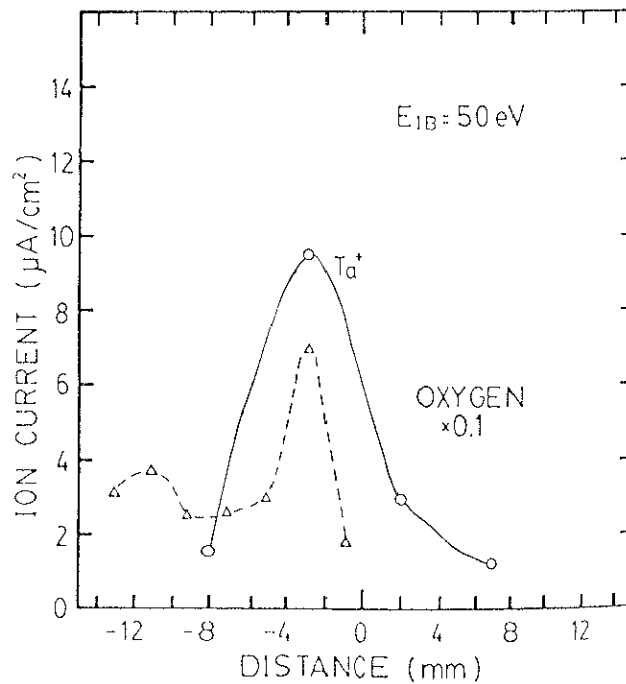
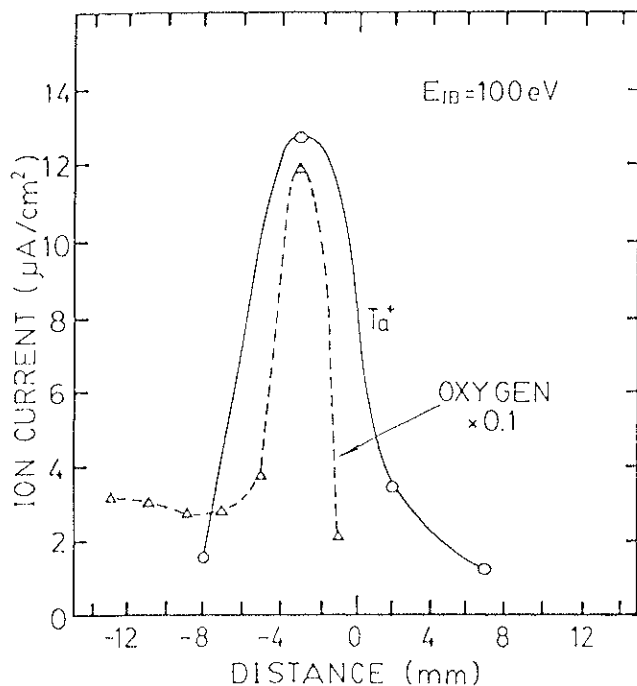
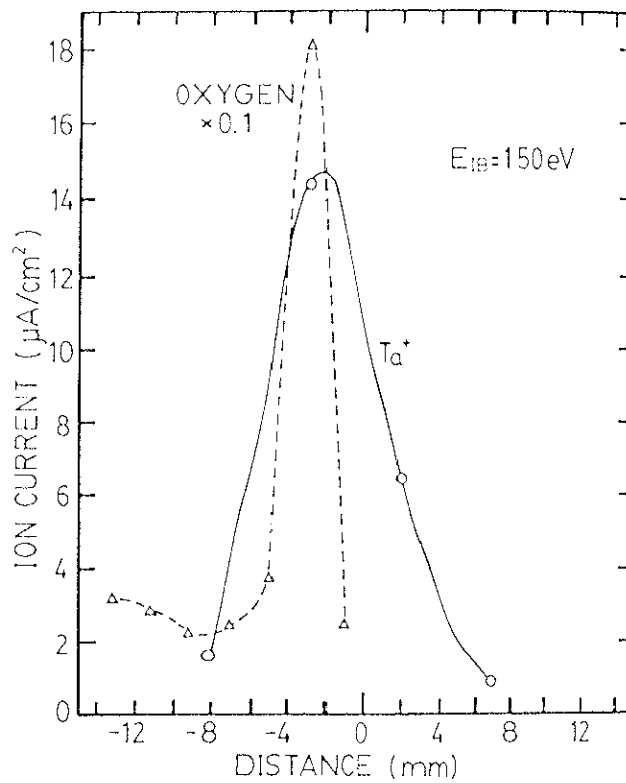
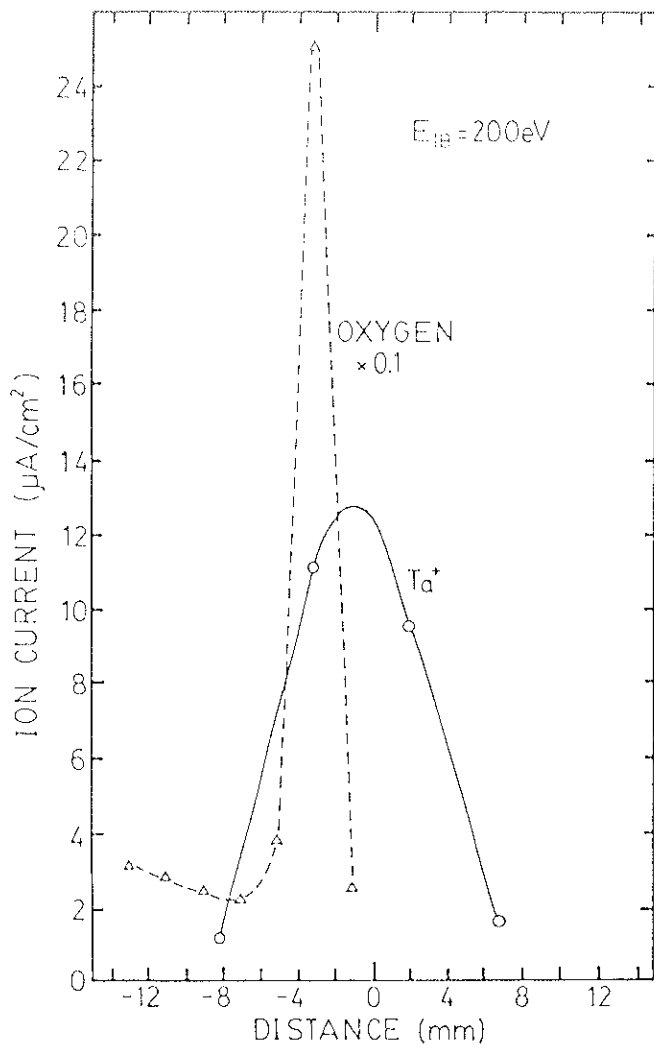


図3.26 イオンエネルギーを変化させた時のX方向のビームプロファイル

うためには、二次元規格化エミッタンス、すなわち、イオンビーム断面の位置および運動量より成る二次元位相空間体積を定数 $m_i \cdot c \cdot \pi$ で割った値、

$$\varepsilon_{2n} = (1 / m_i \cdot c \cdot \pi) \int dp_x dx \quad (3-2)$$

と表わせる。ここで、 m_i はイオン粒子の静止質量、 c は光速である。定義式(3-2)のままではエミッタンスの測定をする場合に不便なので、

$$\varepsilon_{2n} = (1 / \pi) \int (\beta / \sqrt{1 - \beta^2}) (p_x / p) dx \quad ; \quad \beta = v / c$$

のように変形し、 v_x を横軸方向の速度として $\beta = v_x / c$ の近似を用いると、 $\beta / \sqrt{1 - \beta^2}$ は積分の外に出せ、また、 $p_x / p = \alpha(x)$ の近似を用いると、二次元規格化エミッタンスは、

$$\begin{aligned} \varepsilon_{2n} &= (1 / \pi) (\beta / \sqrt{1 - \beta^2}) \int \alpha(x) dx \\ &= (\beta / \sqrt{1 - \beta^2}) \varepsilon_2 \quad [m \cdot rad] \quad (3-3) \end{aligned}$$

と表わせる。

イオン源の放電特性の違いによるイオンビームの質の良否を定性的に調べるために、基板でのイオンビームのエミッタンス特性を測定した。二次元エミッタンス ε_2 の測定は、ビームの断面のx軸各点におけるx方向の運動量分布を測定することによりおこなえる。エミッタンスの測定は、等間隔に開けた小さい穴を持つ板(2mm間隔に、 0.5mm^2 の穴を持つ、 0.5mm^2 のステンレス板)を減速器の代わりに置き、その後方15mmに $\phi 50\ \mu\text{m}$ のタンタル線を可動プローブとして用いた。また、タンタル線には周囲からの二次電子が入射しないように -50V の電圧が印加されている。図3.29は質量分離をしない時、すなわち、アルゴンイオンとタンタルイオンが含まれている場合のエミッタンス図を示す。この時の、イオン電流量は $150\ \mu\text{A}$ 、イオンエネルギーは 10keV である。規格化エミッタンスとしては、全電流の86.5%に相当するエミッタンス値を採用した¹⁵⁾。この時の、規格化エミッタンス ε_{2n} は $4.7 \times 10^{-7}\text{m} \cdot \text{rad}$ である。図3.30は正抵抗領域でイオン源を動作させたときの Ta^+ のエミッタンス図を示す。この時の、 Ta^+ のイオン電流量は $30\ \mu\text{A}$ 、イオンエネルギーは 10keV である。これらのエミッタンス図の形状は、ほとんど変化がない。すなわちE×B質量分

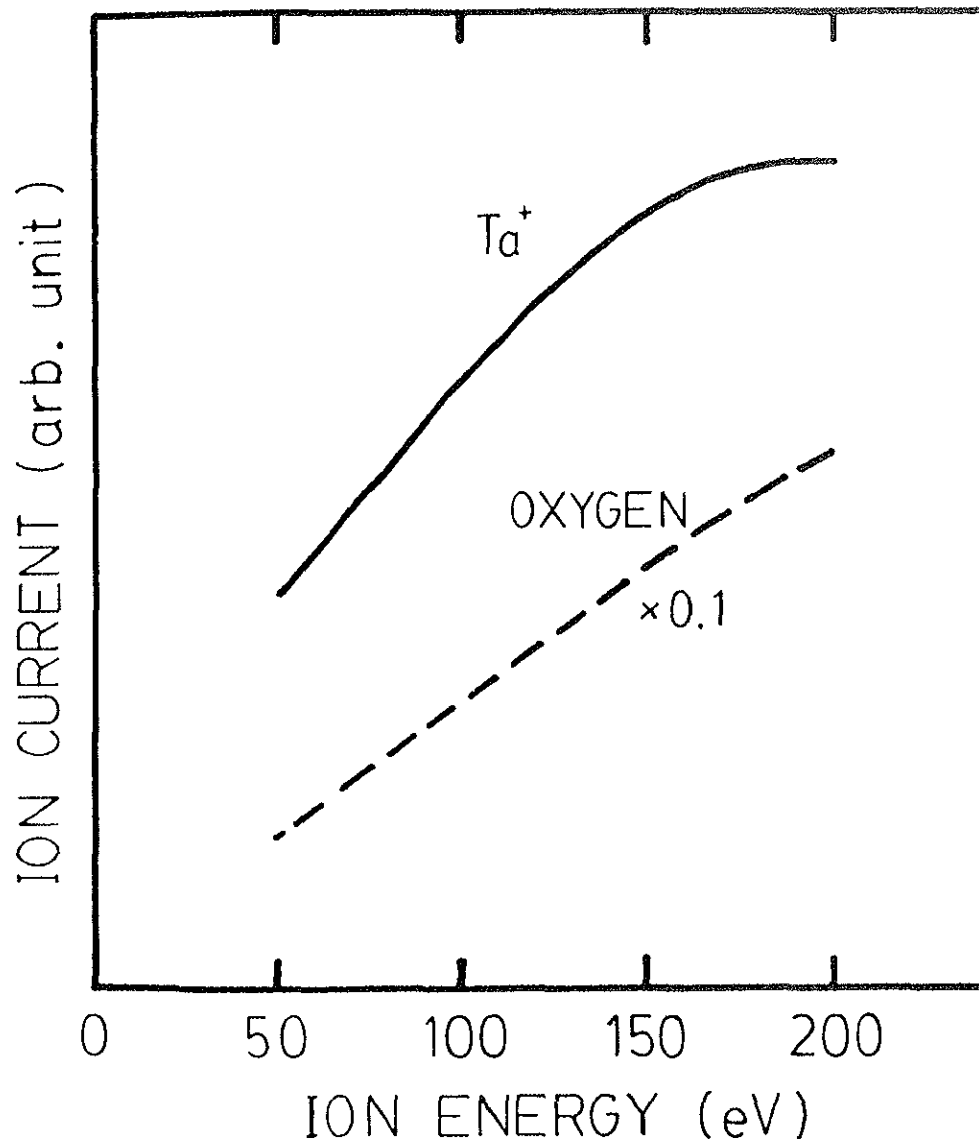


図3.27 6インチの基板に入射してくるイオンビーム電流とイオンエネルギーの関係

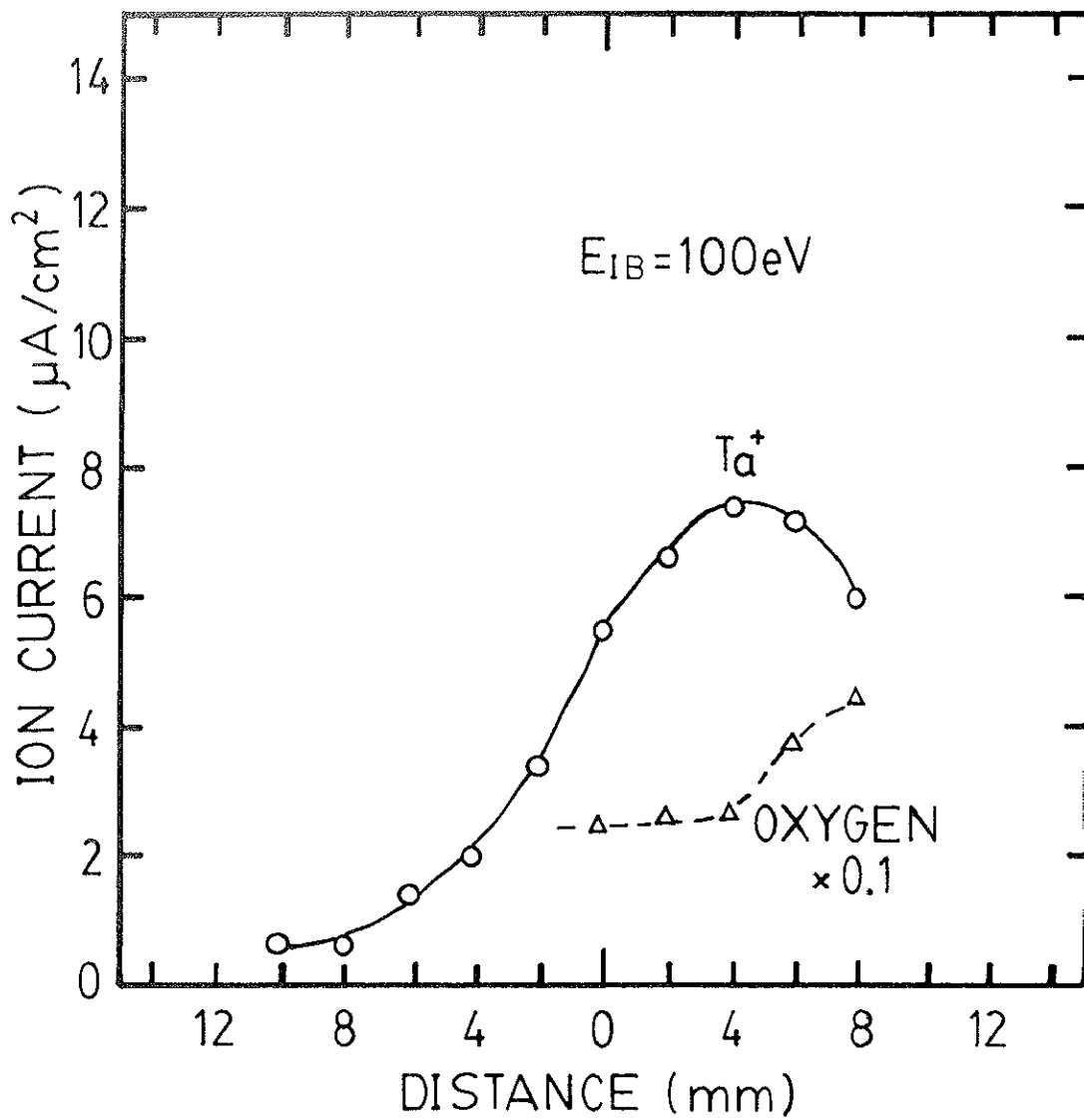


図3.28 イオンエネルギーが100eVの時のY方向のビームプロファイル

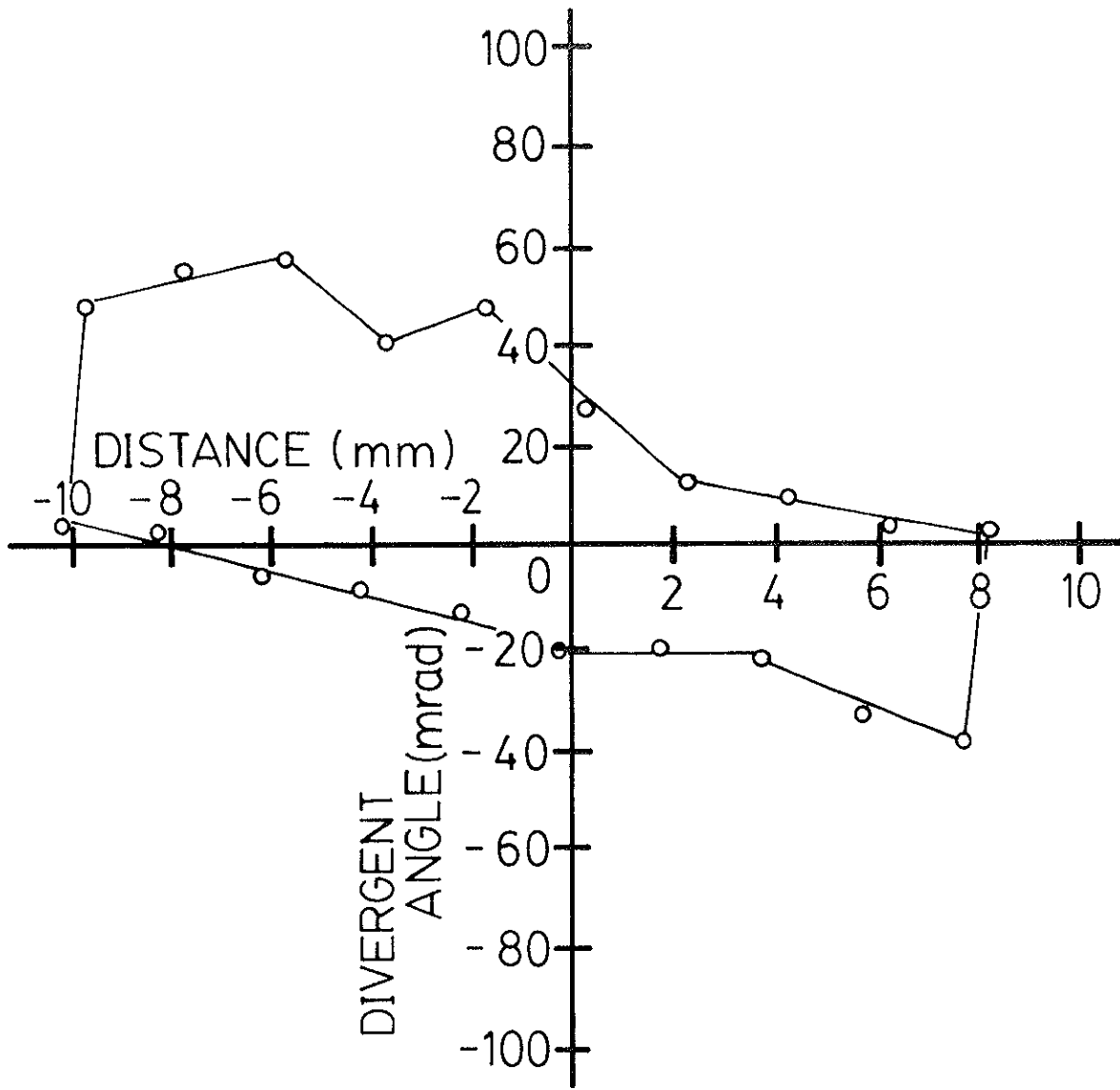


図 3.29 質量分離をしない時のエミッタンス

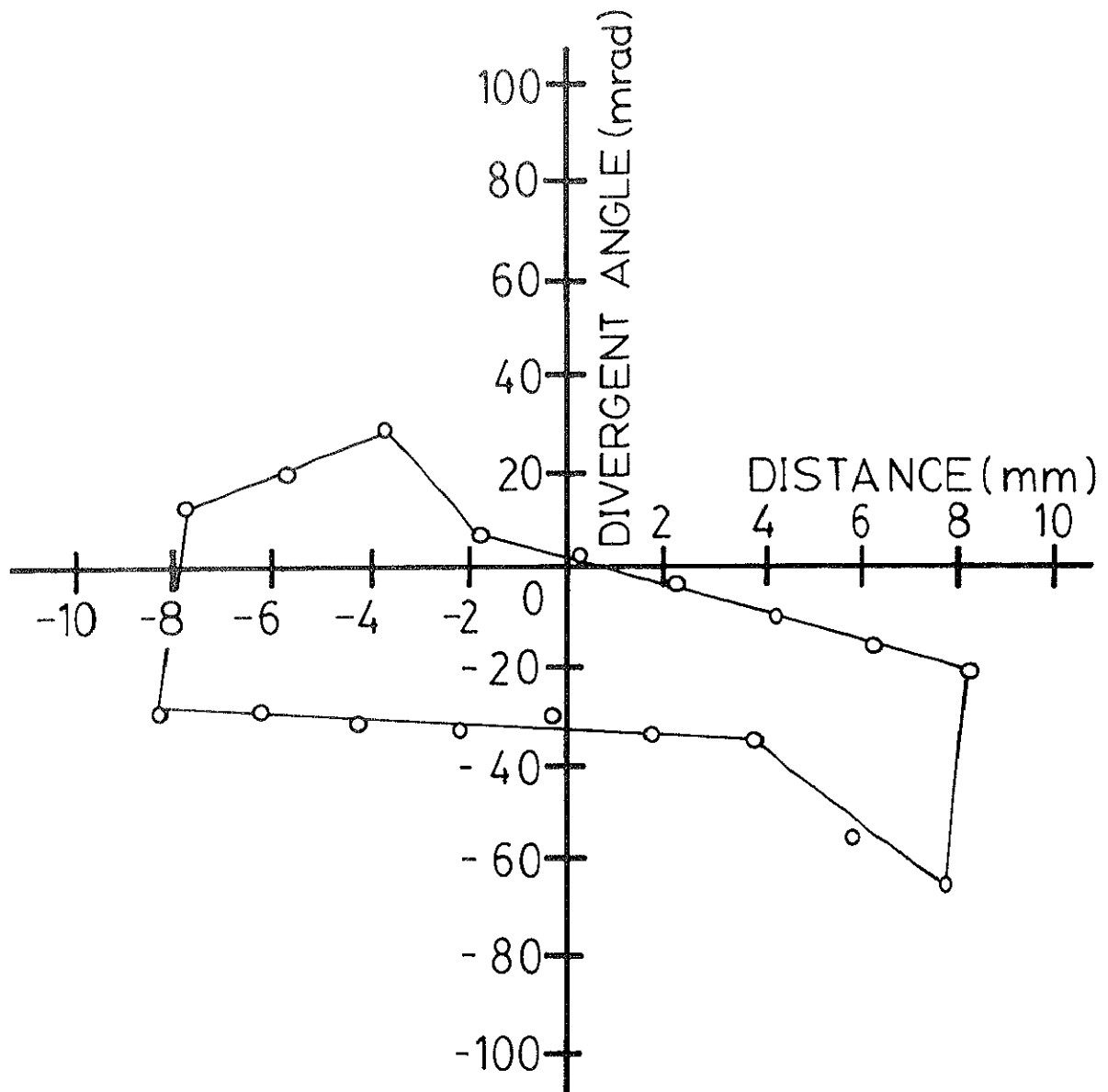


図 3.30 Ta⁺のエミッタンス

離器によるビームの歪みはほとんどないと考えられる。

表3.2は放電特性を変化させたときの規格化エミッタンスを示す。ここで、マイクロ波電力は正抵抗領域と負抵抗領域では37W、PIG放電のみでは0Wである。また、ターゲット電圧はすべて-160Vである。この結果からも、正抵抗領域での運転、すなわち、マイクロ波電力によって放電を制御した場合が、他のモードよりもイオンビームの質がよいことがわかる。

表3.2 Ta⁺イオンビームのエミッタンス

放電特性	正抵抗領域	負抵抗領域	PIG
規格化エミッタンス	1.8	2.7	2.5
$\varepsilon_{2,1} (\times 10^{-7} \text{m} \cdot \text{rad})$			

3.4 まとめ

新しく開発したイオンビームの軌道解析ソフトを用いて、イオンビーム膜堆積装置の設計と製作をおこなった。本装置の特徴をまとめると、次のようになる。

- ① PIG構造小型マイクロ波金属イオン源の採用により、低ガス圧 ($10^{-4} \sim 10^{-3}$ Torr) で、高効率 ($\text{Ta}^+ / \text{Ar}^+ = 40\%$) で金属イオンが生成できる。
- ② E×B質量分離器を用いることにより、純粋な高融点金属イオンを効率よく(輸送効率80%) 試料に照射することができる。
- ③ 屏風型のイオンビーム減速器の開発により、二方向(43°)からのイオンビームを減速して同時に基板に照射することができる。

これらの結果、低エネルギーの高融点金属イオン(100~150 μA)と反応性ガスイオン(200~500 μA)によって、イオンビームのみによる化合物の形成が可能になった。すなわち、本装置によって、イオンビームの複合化技術の可能性を示した。

第3章 参考文献

- 1) J. Amano, P. Bryce, and R. P. W. Lawson, *J. Vac. Sci. Technol.*, **13**, 591 (1976)
- 2) Y. Ota, *J. Vac. Sci. Technol.*, **A2**, 393 (1984).
- 3) B. R. Appleton, Oak Ridge National Lab. Rev., **19**, 18 (1986).
- 4) J. H. Freeman, W. Temple, D. Beanland, and G. A. Gard, *Nucl. Instr. Methods*, **135**, 1 (1976) .
- 5) S. C. Cheng, I. Yamada, and T. Takagi, *Proc. 5th Symp. on Ion Source and Ion Assisted Technology*, ed. T. Takagi (Kyoto Univ., Kyoto, 1981) p.171.
- 6) G. D. Alton, J. B. Roberto, C. W. White, and R. A. Zuhr, *Nucl. Instr. Methods*, **177**, 273 (1980) .
- 7) 石川順三、『イオン源工学』アイオニクス (1986) p.278.
- 8) J. Ishikawa, Y. Takeiri, and T. Takagi, *Rev. Sci. Instrum.*, **57**, 1512 (1986) .
- 9) K. Ota, N. Inoue, H. Nihei, J. Morikawa, S. Ishida, and T. Uchida, *Jap. J. Appl. Phys.*, **23**, 1241 (1984).
- 10) 関原敏伸、一柳高時、吉田善一、S61秋季応物予稿集、29p-ZF-11.
- 11) 榎園正人、『境界要素解析』培風館 p.4.
- 12) 石川順三、『イオン源工学』アイオニクス (1986) p.177.
- 13) J. R. Pierce, *Theory and Design of Electron Beam* (D. van Nostrand Co. Ltd., New York, 1954) 2nd ed., p.189.
- 14) Y. Yoshida, T. Ohnishi, S. Nishitani, and Y. Hirofuji, *Proc. 11th Symp. on Ion Source and Ion-Assisted Technology*, ed. T. Takagi (Kyoto Univ., Kyoto, 1987) p.29.
- 15) 石川順三、『イオン源工学』アイオニクス (1986) p.294.

第4章 イオンビームによる膜形成

イオンビームを用いる薄膜形成法は比較的精密な制御が可能であることから、組成や構造に敏感な材料への適用が検討されている^{1~3)}。従来から、比較的低エネルギーの一次イオンビームを薄膜形成に利用することにより、第1章で述べたように、通常の方法では得られない構造や組成の膜が得られたり、また、通常の単結晶成長温度より低い温度でエピタキシャル成長が可能なが報告されている。薄膜を構成する物質の全部または一部をイオンビームとして膜形成をおこなう方式には、

- ① 真空蒸着とイオンビームを組み合わせた方式⁴⁾、
- ② 蒸気化した物質の一部をイオン化する方式⁵⁾、
- ③ 質量分離をしてイオン種とエネルギーを制御する方式⁶⁾、

に大別できる。これらの方式によって、(a) イオンにより直接膜を堆積させる技術、(b) イオンを薄膜に注入し改質する技術、(c) この二つの技術を組み合わせたイオンミキシング技術等が可能である。本論文の第2章では、①、③の方式に利用できるイオン源について述べ、また第3章では、③の方式用の装置に関して述べた。特に、③の方式は最も理想的な薄膜形成法であり、この方法を用いることにより、研究者はオーケストラのコンダクターのごとき材料創成も夢ではない。しかし、きわめてゆっくりしたプロセスであり、生産現場において、コストに見合ったプロセスとして使用できるまでには、まだまだ大きな課題が山積しているのも事実である。ところで、この方式において信頼性の高い、新機能材料の創成プロセスを可能にするため、このプロセスおよび装置に必要な要素技術を成熟させることが必要である。この方式により期待できる効果は、

- (1) 高真空中で膜堆積が可能になり、残留ガスからの不純物混入を少なくする、
- (2) 質量分離器でイオンビーム内に含まれる不純物を取り除くことにより、原材料より高い純度の膜を得ることができる、
- (3) イオンのエネルギーを制御することにより、膜質や下地との密着性が制御できる、
- (4) イオンのエネルギーをある程度高くすることにより、核形成が促進され一様な膜成長がおこなえる、

等である。そこで、本論文の第3章で述べた装置を用いて、今まで試みられていなかった高融点金属イオンビームを基礎とした化合物薄膜形成の可能性を見出す実験をおこなったので以下に述べる。

4.1 Ta₂O₅ 薄膜の形成

高密度集積回路用のキャパシタ材料として高誘電率絶縁体のTa₂O₅が注目されている。従来から、酸化タンタル膜を形成する方法として、金属タンタルを直接熱酸化する方法⁷⁾、反応性スパッタ法⁸⁾、CVD法⁹⁾など種々の方法が試みられている。しかし、次世代の半導体メモリー用としては超薄膜化が要求されるために、高密度で純粋な膜を界面制御しながら形成する必要がある。特にTa⁵⁺の酸化物は、種々の多形で構成されており、異種金属原子を含んで安定化する相もあって構造は複雑である。そこで、このような高次の酸化物の合成には、純粋な材料をエネルギー制御しながら基板に供給できるIBD法が有利である。ここではTa⁺イオンビームを用いた酸化タンタルのIBD法を試みた。

4.1.1 反応性イオンビーム法

図3.6の装置を用いて、酸素雰囲気中に置かれたSi基板上にTaイオンビームを照射してTa₂O₅膜を形成する反応性イオンビーム法について、Taイオンビームのエネルギー依存性と、酸素ガスの導入量依存性について調べた。尚、以下の実験において、Ta⁺イオンビーム電流は50 μAである。また、基板は酸素分子の吸着をよくするために水冷してある。

図4.1はTa⁺イオンの入射エネルギーを変化させた場合の、Ta、O、Siの深さ方向のオーグジュプロファイルを示す。それぞれ堆積時間が等しいので、入射エネルギーが増加するほど、膜堆積速度が増加していることがわかる(約200eVまで増加する)。堆積速度を無視すれば、この装置では20eVから膜形成が可能である。一方、入射エネルギーを20eV以下にすると、装置性能の問題から入射イオンビームが散乱されて、膜が形成できなくなる。また、膜の表面で酸素濃度の高い領域がみられるが、これは試料を大気中に出したときに酸化されたものと考えられる。

図4.2はTa⁺イオンの入射エネルギー40eVのときのO₂ガス導入量と膜中の酸素量の関係を示しており、横軸はO₂流量を、縦軸はO_{KLL}オーグジュスペクトル強度である。O₂ガス流量が増加すると、酸素の信号強度が増大していることがわかる。しかし、酸素を1.0sccm導入しても膜中の酸素は酸化タンタルの化学量論的組成比(ストイキオメトリー)に達することなく飽和してしまう。酸素をこれ以上導入するとビームラインの真空度が低下し、イオンビームが散乱されるので、これ以上酸素流量を増やすことはできない。この方式で、

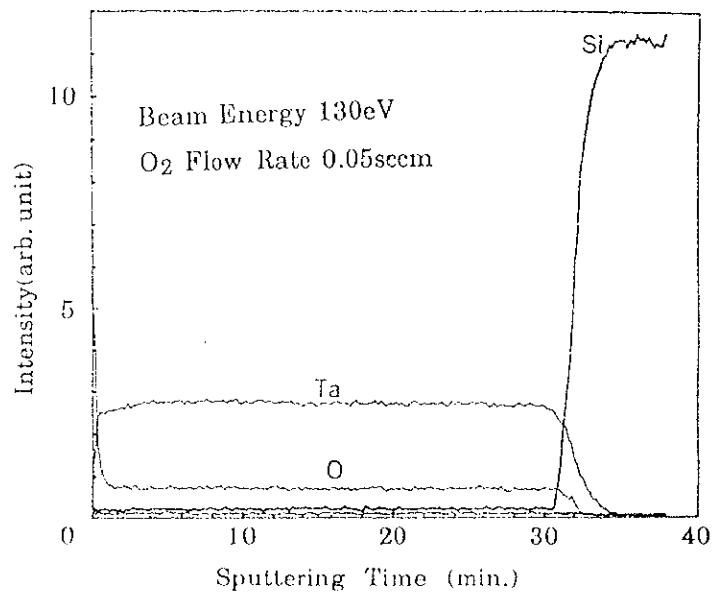
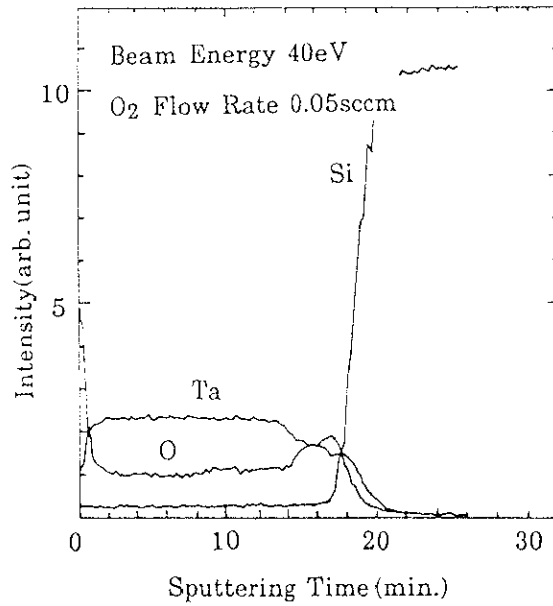
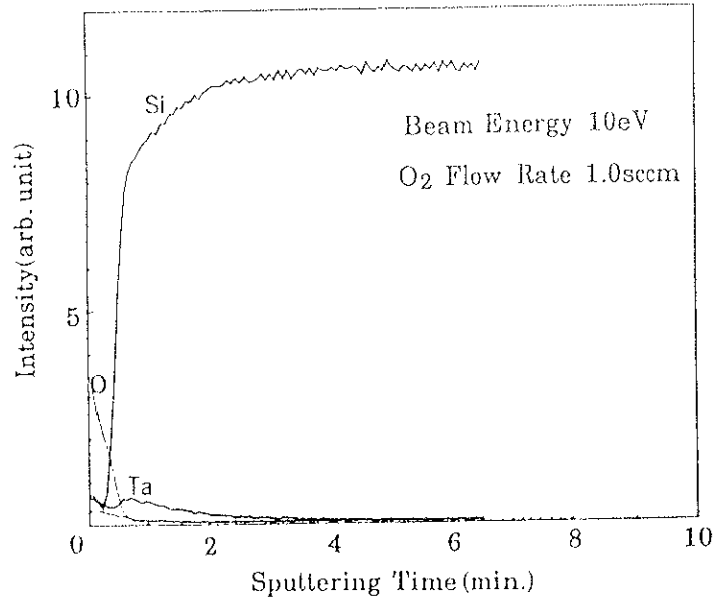


図4.1 Ta⁺イオンの入射エネルギーを変化させた場合の、Ta、O、Siの深さ方向のオージェプロファイル

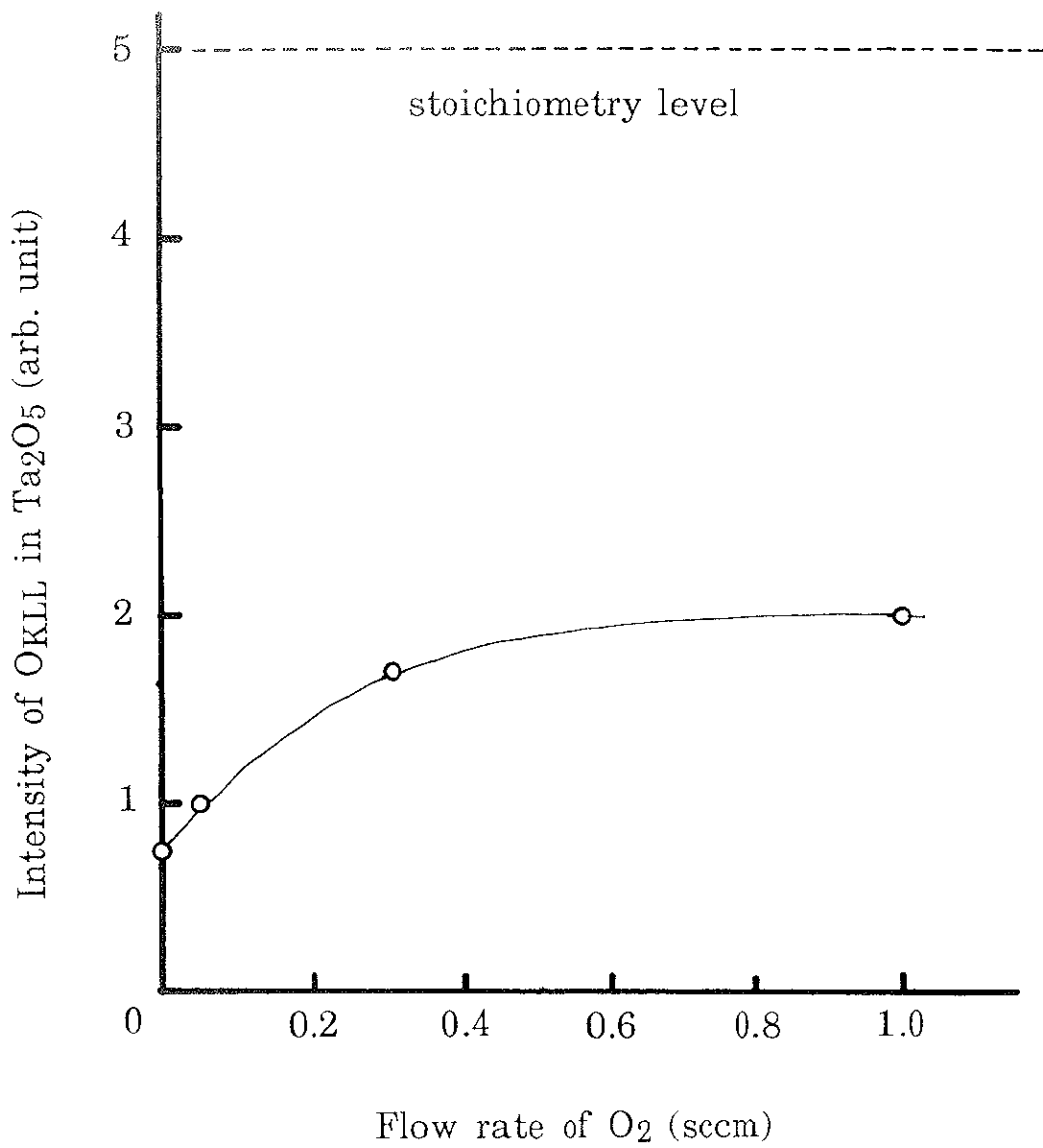


図4.2 Ta⁺イオンの入射エネルギー40eVのときのO₂ガス導入量と膜中の酸素量の関係

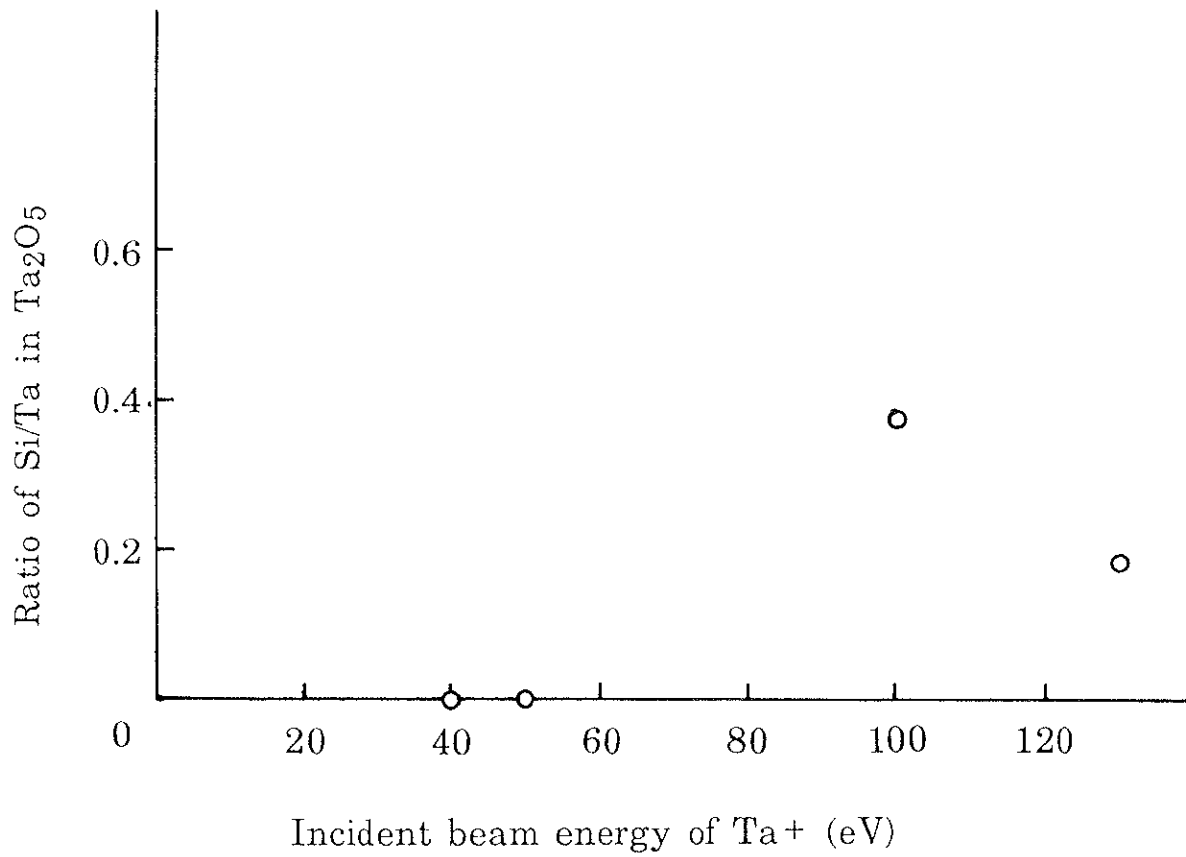


図4.3 Ta⁺イオンの入射エネルギーと膜中のSi量の関係

Ta₂O₅が形成できない理由は、基板に吸着した酸素とTa⁺イオンが反応するよりもTa⁺イオンが吸着酸素をスパッタリングする効果が強いためと考えられる。

図4.3はTa⁺イオンの入射エネルギーと膜中のSi量の関係を示す。イオンエネルギーが低下するとSiの含有量も減少し、50eV以下ではXPS(X-ray photoemission spectroscopy)でもAES(Auger electron spectroscopy)でもSiは観測されない。この結果から、Siの不純物はTa⁺イオンビームによる基板のスパッタリングに起因すると考えられる。以上より、現状の装置では反応性イオンビーム法によって組成比の良い酸化タンタル薄膜を形成することは困難であることがわかった。

4.1.2 酸素イオンビーム照射法

反応性イオンビーム法で生成した酸化タンタルに酸素イオンビームを照射し、イオンビームによる後酸化を試みた。反応性イオンビーム法ではTa⁺イオンビームのエネルギーを40eVとした。また、酸素イオンビームは質量分離をおこない、O₂⁺を130μAで、20分照射した。

図4.4は酸素雰囲気中でTa⁺イオンを40eVでSi基板上に堆積させ、その後、O₂⁺イオンビームを40eVでTaO_xに照射したときの膜の深さ方向のオーグジュプロファイルである。表面から約80Åまで酸素が入り込んでおり、ストイキオメトリーを満足した酸化タンタルが形成されている。

図4.5は図4.4と同じ方法でTaO_xを堆積させ、O₂⁺イオンビームを15keVで照射した膜の深さ方向のオーグジュプロファイルである。表面から数100Åの所に酸素が注入されているが、深さ方向に均質な酸化タンタルは得られていない。また、Siが膜中に取り込まれており、SiとTaO_xの界面にSiO₂層が形成されているか、または、膜中にSiO₂が点在していると考えられる。

図4.6はTa⁺とO₂⁺イオンビームを交互に照射したときの膜の深さ方向のオーグジュプロファイルである。Taの過剰な所が約300Åで、その間にストイキオメトリーに近い酸化タンタルが100~200Å形成されている。これらの結果より、酸素をイオンビームとして基板に供給することにより、Taとの反応性が強くなり、ストイキオメトリーに近い酸化タンタルが形成されることがわかった。しかし、これらの方法では均質な膜を形成することは極めて困難である。すなわちTa₂O₅のような複雑な酸化物では、酸素イオンビームによる非熱平衡な方法では均質な膜ができにくいと考えられる。

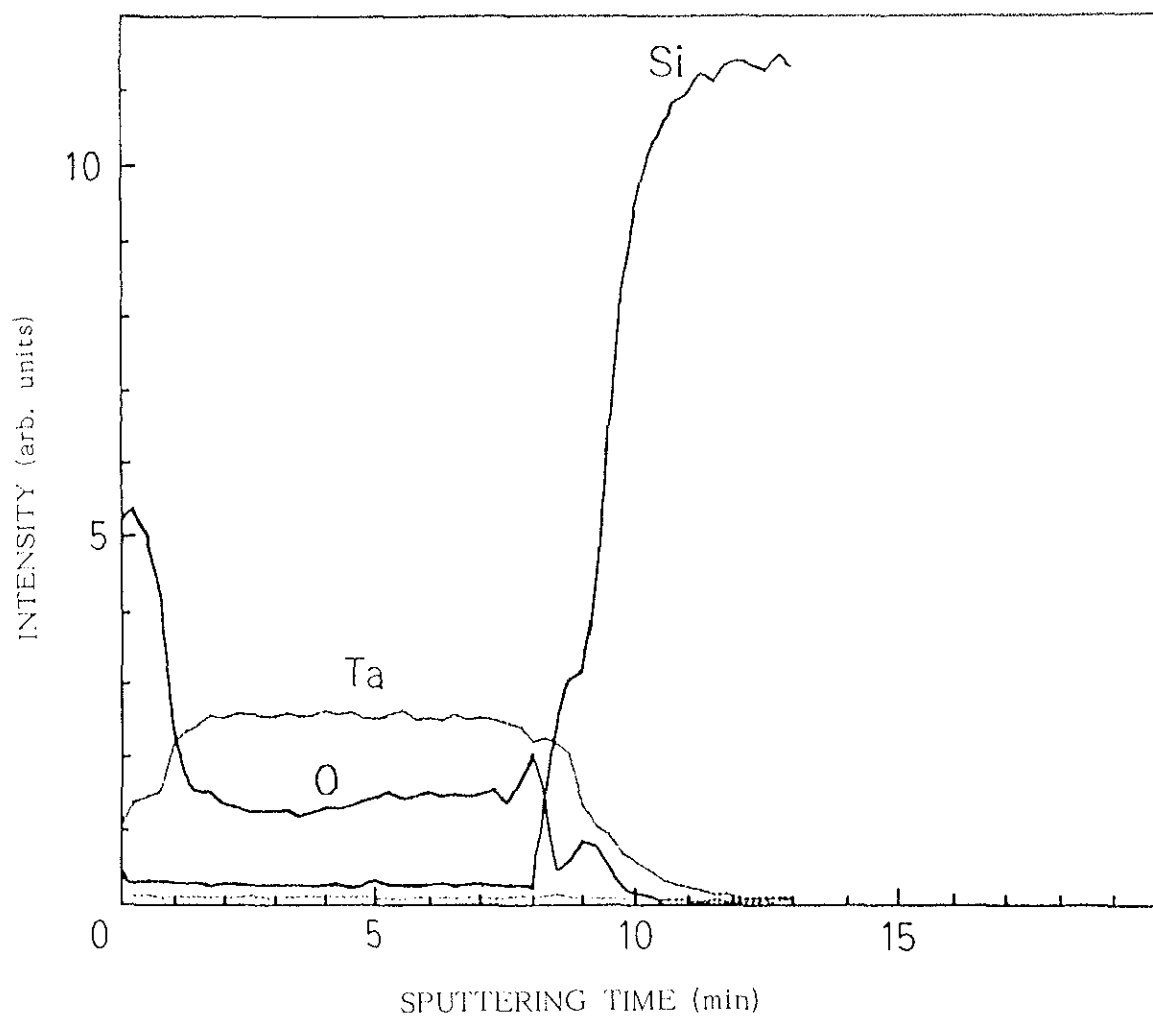


図4.4 酸素雰囲気中Ta⁺イオンを40eVでSi基板上に堆積させ、その後、O₂⁺イオンビームを40eVでTaO_xに照射した膜の深さ方向のオージェプロファイル

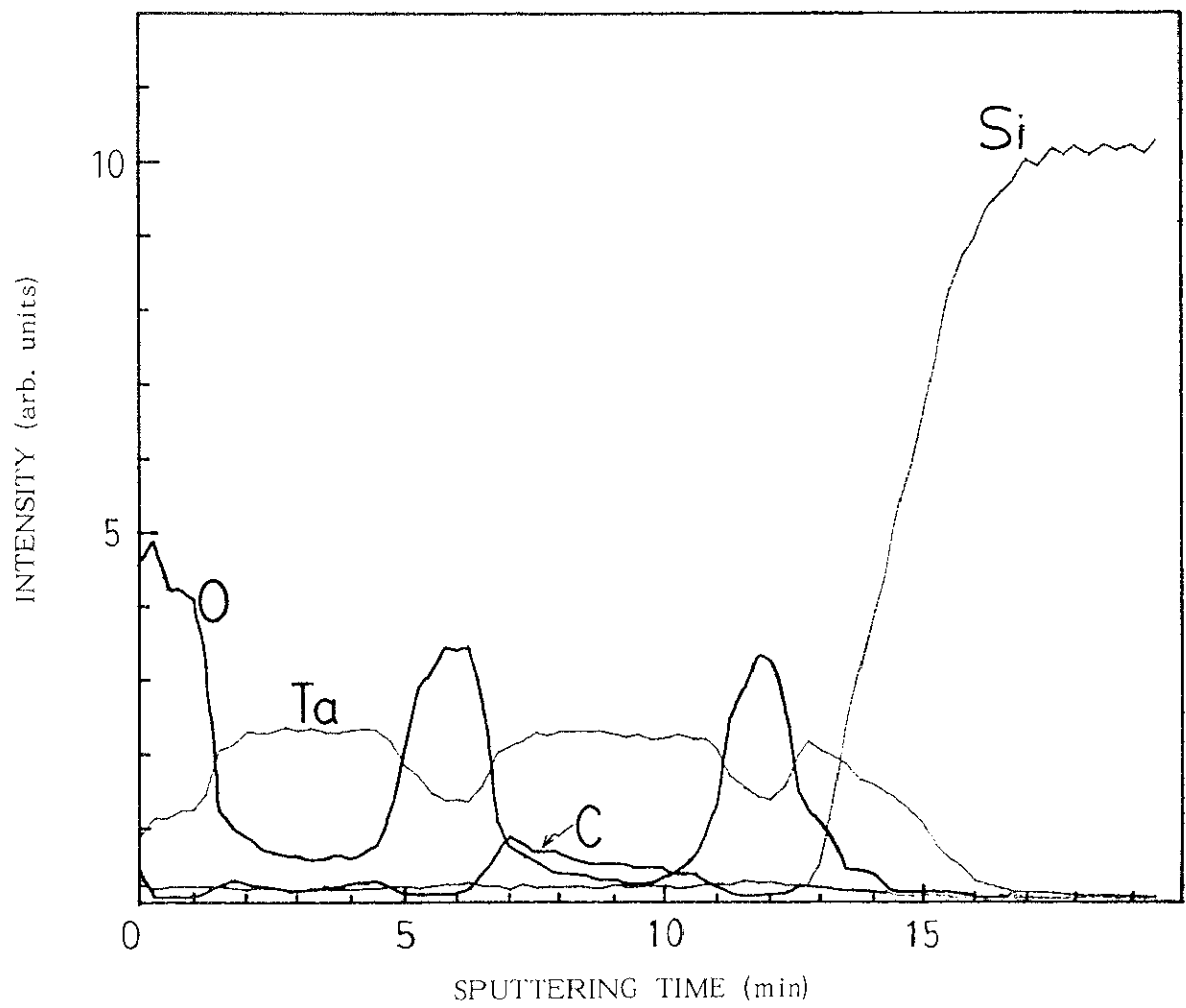


図4.5 図4.4と同じ方法でTaO_xを堆積させ、O₂⁺イオンビームを15keVで照射した膜の深さ方向のオージェプロファイル

4.1.3 ダブルイオンビーム法

図3.20の装置を用いて、Taイオンビームと酸素イオンビームを同時にSi基板の上に照射して酸化タンタルを形成するダブルイオンビーム法を試みた。この場合、Taと酸素イオンの基板への入射エネルギーを均しく保ちながら、入射エネルギーを変化させた。酸素イオンビームラインは質量分離器を有しておらず、 O^+ と O_2^+ の混合イオンを減速器を通し、基板に対して 43° の角度で入射させた。

主な実験条件を表4.1に示す。基板はすべてCZ(Czochralski)-Siを用いた。膜の評価は、AESにより組成均一性および不純物を測定し、XPSにより結合状態(Taの酸化数)を測定した。

表4.1 実験条件

入射エネルギー	60~200eV
Ta ⁺ イオン電流	50 μ A
酸素イオン電流	180 μ A
引出電流	12kV
Ta ⁺ ターゲットバイアス電圧	160~200V
マイクロ波電力	40W
到達真空度	8×10^{-6} Torr
堆積中の真空度	$2 \sim 8 \times 10^{-7}$ Torr

図4.7はTaと酸素のイオンビームを100eVで照射した場合のSi基板の上に堆積したTa₂O₅膜の深さ方向のオージェプロファイルである。膜中の元素分布は、ほぼ一様で均質な膜が形成されていることがわかる。すなわち、酸素をイオン化すると、Taと酸素の反応は大幅に活性化される。

図4.8は入射エネルギーの変化に対するTa4fのXPSスペクトルである。膜の表面は空気中の酸素により数 \AA 酸化されてしまうので、Arイオンビームにより60 \AA スパッタリングした後の表面をXPSにより測定した。入射エネルギー100eVの場合、測定のためのスパッタリングによるダメージでピークはブロードになっているが、大部分のTaがTa₂O₅に極めて近い結合状態になっている。

ところが60eVで成膜した場合はTa₂O₅も観測されるが、低価数のTaも多い。これは、入

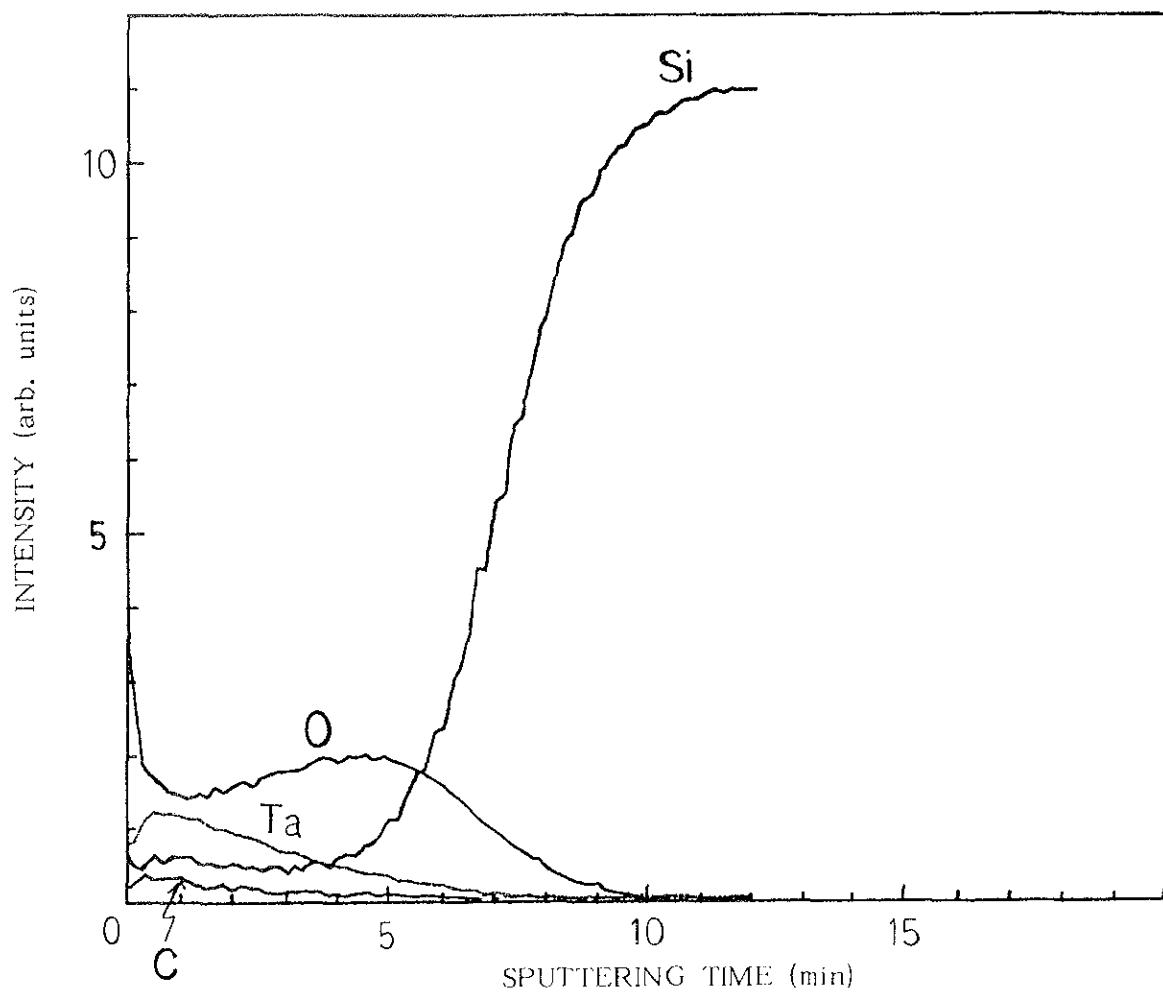


図4.6 Ta⁺とO₂⁺イオンビームを交互に照射した膜の深さ方向のオージェプロフィール

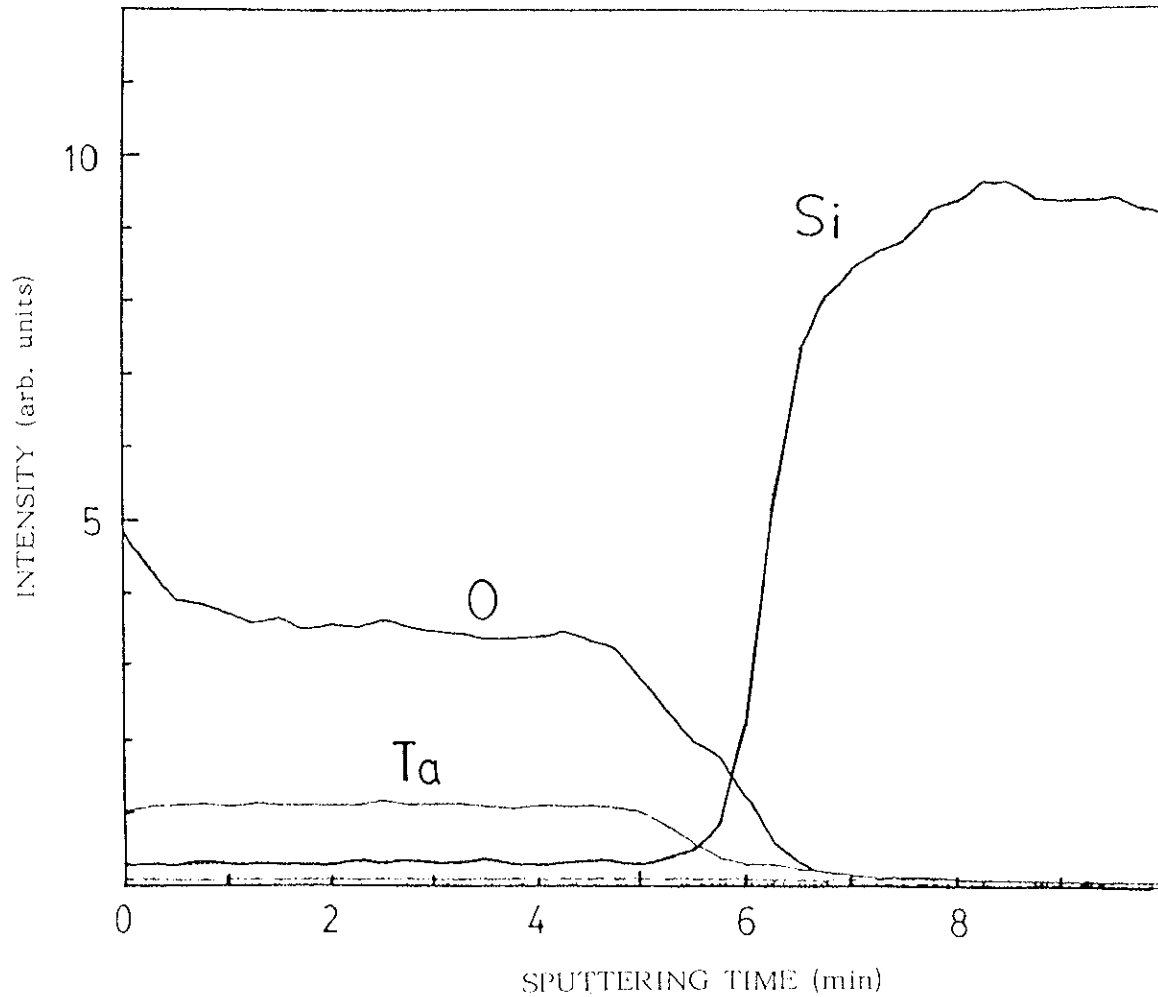


図4.7 Ta⁺と酸素のイオンビームを100eVで照射した場合のSi基板の上に堆積したTa₂O₅膜の深さ方向のオージェプロファイル

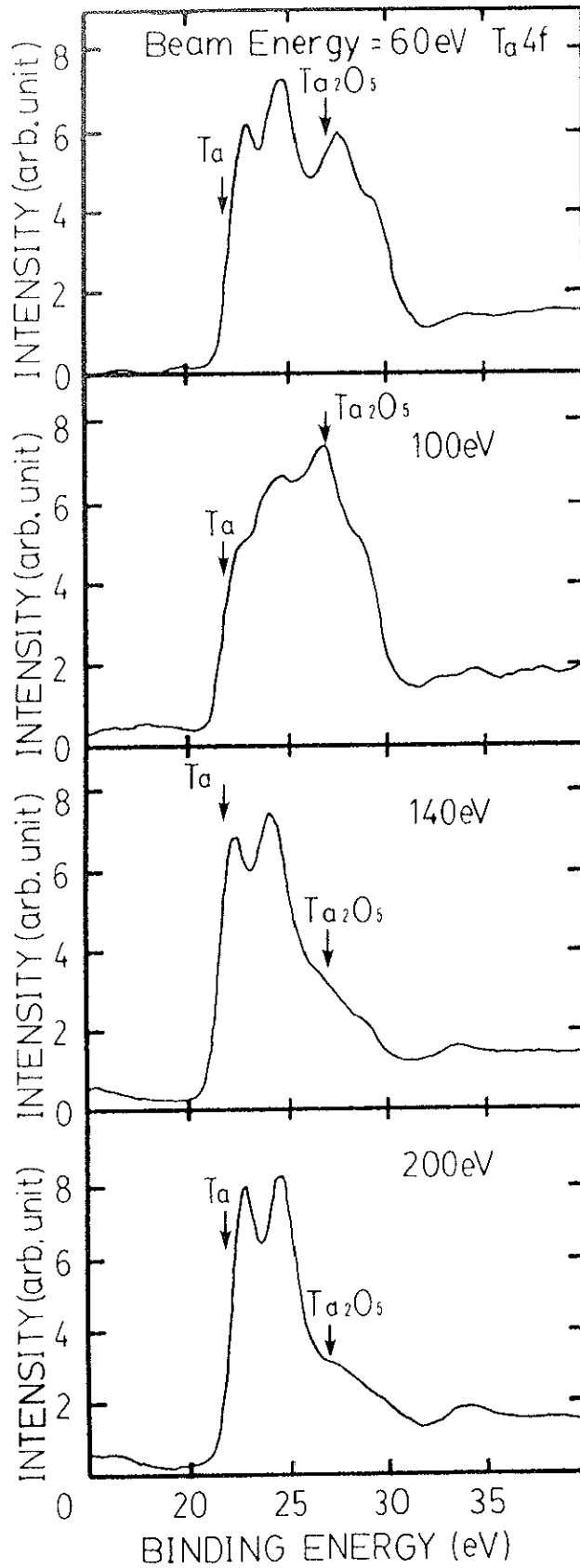


図4.8 入射エネルギーの変化に対するTa_{4f}のXPSスペクトル

射エネルギーを低くするとイオンビームが発散されて堆積速度が減少するが、タンタルよりも酸素イオンの方が斜めから入射している分だけより多く発散され、酸素イオンが不足の状態になるためである。この場合、酸素の1s軌道からのXPSスペクトルを調べると、図4.9に示すように、60eVの場合、膜中にSiO₂が観測される。これも堆積速度の減少によって、膜厚が不均一になりSi基板からの信号が混在していることによると考えられる。

入射エネルギーが140eV、200eVの場合、図4.8よりTa₂O₅は減少し、低価数状態のTaが急激に増加していることがわかる。また、酸素の1s軌道からのXPSスペクトルを調べると、図4.9からわかるように、入射エネルギーが200eVの場合、多量のSiO₂が観測される。140eVの時にもSiO₂のピーク位置に肩がみられ、膜中にSiO₂が含まれていることがわかる。膜中のSiとTaの濃度比は100eVでは0.00、140eVでは0.18、200eVでは0.77である。このことから、入射エネルギーが増大すると基板をスパッタリングすることによって生じたSiが膜中に取り込まれて酸化されて、膜中のSiO₂濃度が上昇したと考えられる。

反応性イオンビーム法では堆積条件を変化させても完全なTa₂O₅膜を得ることはできなかった。しかし、ダブルイオンビーム法により酸素をイオン化し活性にすれば、Ta₂O₅に極めて近い膜を形成することができた。したがって、ダブルイオンビーム法は従来困難とされていた種々の機能薄膜を低温で形成する手段として有望であることが確認された。

一方、ダブルイオンビーム法によれば、140eV以上になると基板のSiがスパッタリングされはじめ膜中にSiが含まれること、また、Siの含有量はエネルギーが大きくなれば多くなることがわかった。逆に、100eV以下ではビームの発散が大きくなり、堆積速度が遅く不均一な膜が形成される。Siが膜中に取り込まれると、SiO₂の方がTa₂O₅より生成自由エネルギーが大きいため、TaよりSiの方が先に酸化される。そのため、入射エネルギーが増大すると低価数のTaが増加すると考えられる。

入射エネルギーが増大すると低価数のTaが増加するもう一つの原因として、入射イオンにより膜中の酸素が選択的にスパッタリングされることが考えられる。スパッタリングのために、堆積速度は入射エネルギー約150eVのときに最大になり、それ以上では減少する。そして、250eVでは膜が形成されなかった。

4.1.4 デバイス応用

図4.10は電気特性測定のために作成したLOCOS(local oxidation of silicon)構造のMIS

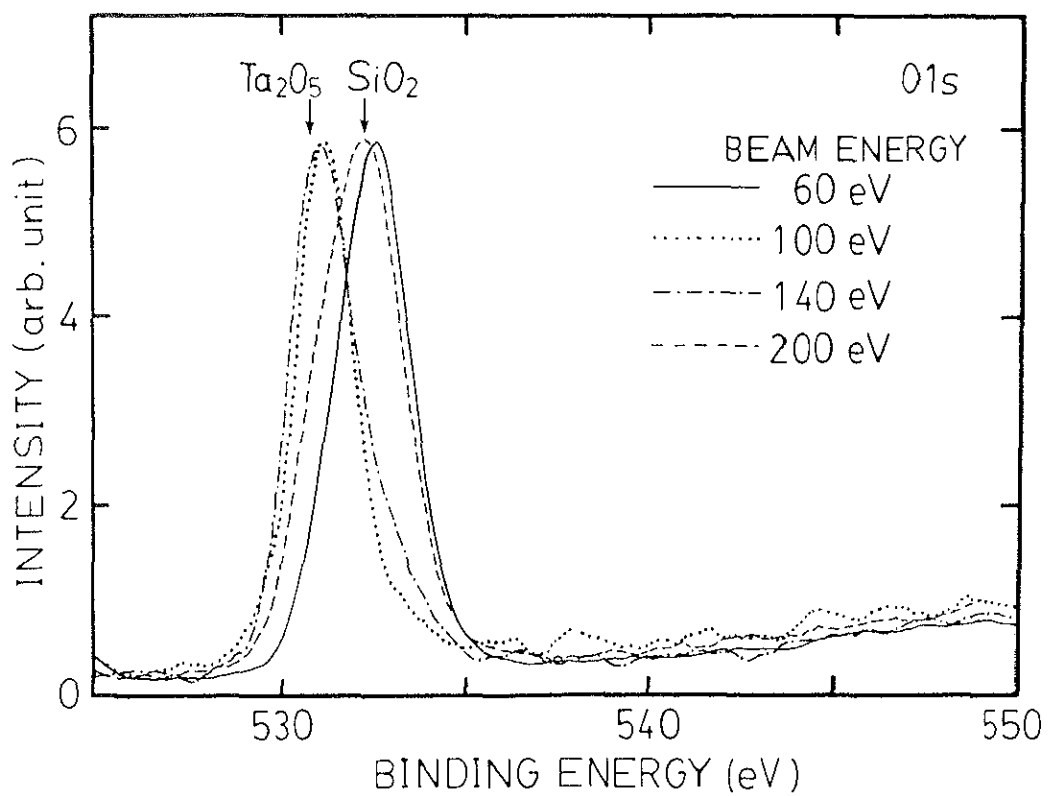


図4.9 酸素の1s軌道からのXPSスペクトル

(metal insulator semiconductor)キャパシタを示す。基板はC Z (100)n-typeとp-typeのシリコンウエハを用い、室温で成膜をおこなった。Ta₂O₅の膜厚は300Åで、ダブルイオンビーム法で形成され、そのときのイオンエネルギーはタンタルも酸素も100eVであった。成膜後に、窒素雰囲気中、400~600°Cで15分間熱処理をした。その後、マグネトロンスパッタリング法で約800Åのアルミニウムを形成し、ドライエッチングで電極を作った。

図4.11は熱処理温度を変化させたときのI-V特性を示す。リーク電流は熱処理温度が高くなるにつれて低下していくが、500°C以上ではまた高くなる。これは、600°C以上の熱処理では、アモルファス状態のTa₂O₅膜が結晶化し¹⁰⁾、リーク電流が粒界に沿って流れるためである。500°CではAlゲートに-5Vを印加したとき、リーク電流は $7.3 \times 10^{-7} \text{A/cm}^2$ である。この値は膜厚100ÅのSiO₂でのAlゲートMOS (metal oxide semiconductor)キャパシタと同程度であり、キャパシタ絶縁膜として十分な特性を有しているといえる。

図4.12は100KHzで測定したときのC-V特性を示す。高周波C-V測定により、p-type基板を用いた場合には、容量は小さく、電圧に対する変化がない。また、n-type基板を用いた場合には、容量は大きく、電圧に対する変化がない。すなわち、容量が基板の種類によって変化することにより、p-typeでは反転状態、n-typeでは蓄積状態になっている。さらに印加電圧によって容量の変化がないので、フラットバンド電圧が大きく負の方にずれている。フラットバンド電圧は、界面の準位や絶縁物中の電荷などによって値が変化するので、界面や絶縁膜を評価することができる。この結果からは、堆積膜中に正の電荷が存在していることを示している。この原因としては、基板との界面にトラップが多く存在している可能性があり、電子によるダメージが残っていると考えられる。

4.2 その他の化合物

§ 4.1.3でTa₂O₅膜中にSiが取り込まれる原因について、SiO₂の方がTa₂O₅より酸素原子当たりの生成自由エネルギーの絶対値が大きいため、TaよりSiの方が先に酸化されると考えた。これを確認するために、MoやWの様に酸化物の生成自由エネルギーの絶対値がさらに小さい金属の酸化膜をダブルイオンビーム法で形成した。入射エネルギーは150eVとした。これらの膜の深さ方向のオーグジュプロファイルを図4.13と図4.14に示す。Taの場合に比べてSiO₂の含有量は明らかに多い。すなわち、イオンエネルギーと膜組成の関係は、表4.2に示すように、酸素原子当たりの自由エネルギーの絶対値はSiO₂が一番大きく、そ

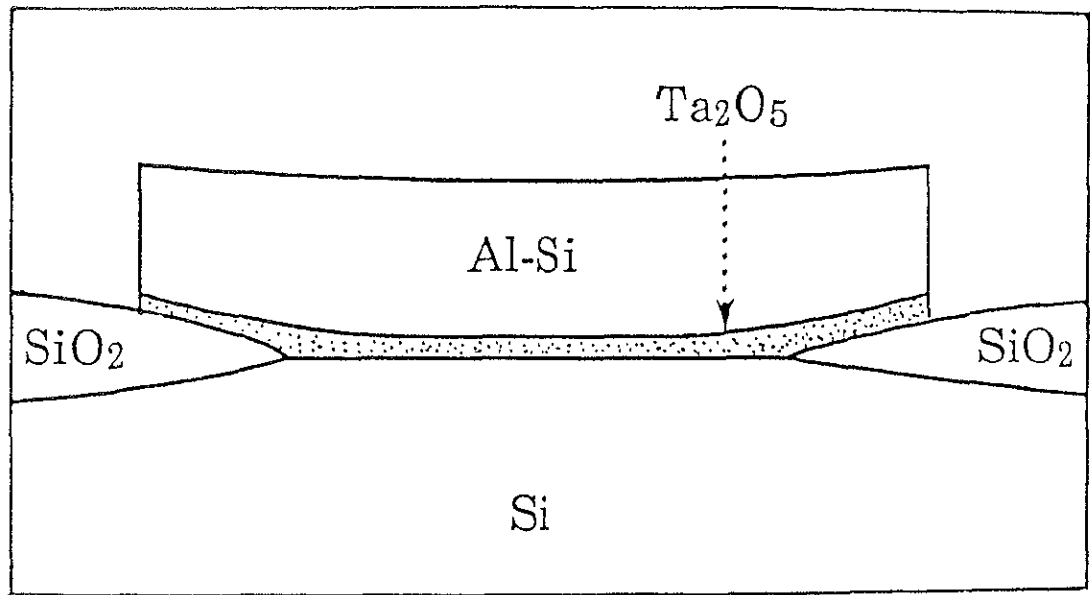


図4.10 電気特性測定のために作成したLOCOS構造のMISキャパシタ素子断面図

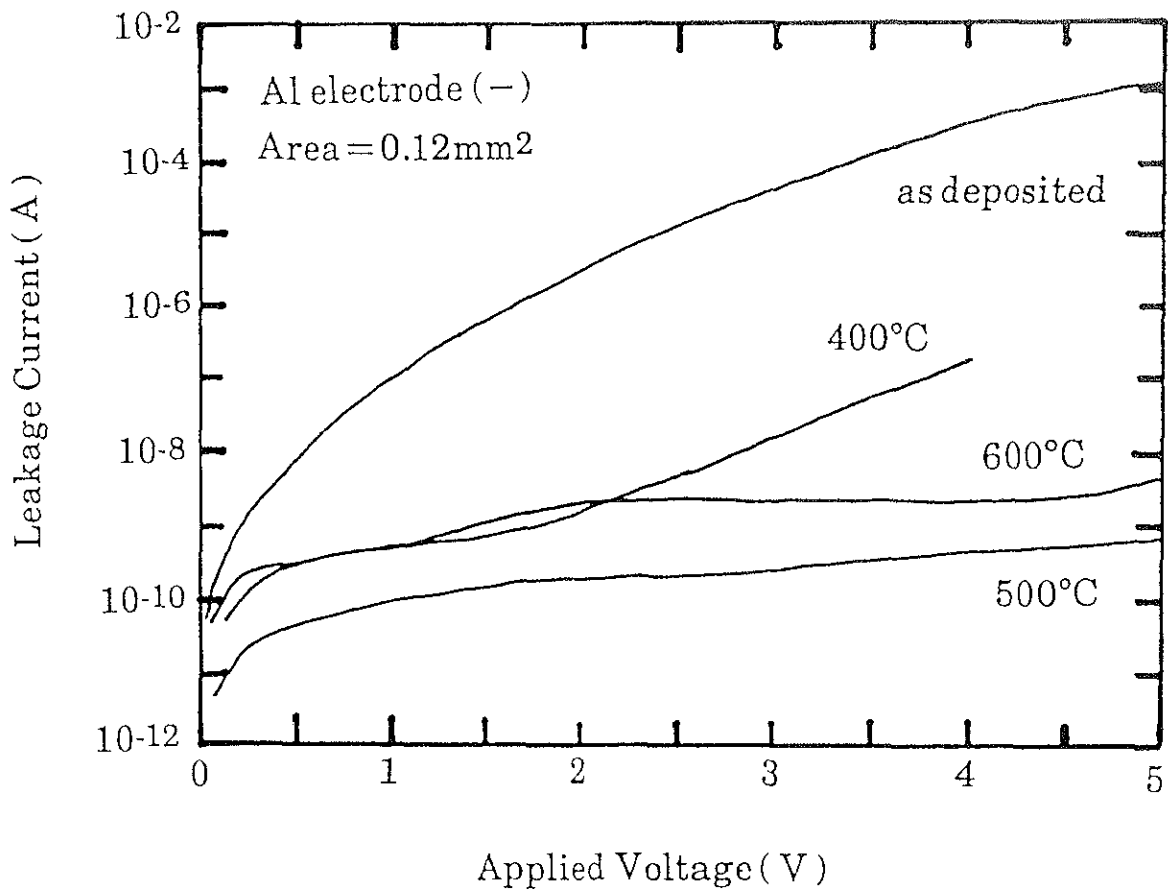


図4.11 熱処理温度を変化させたときのI-V特性

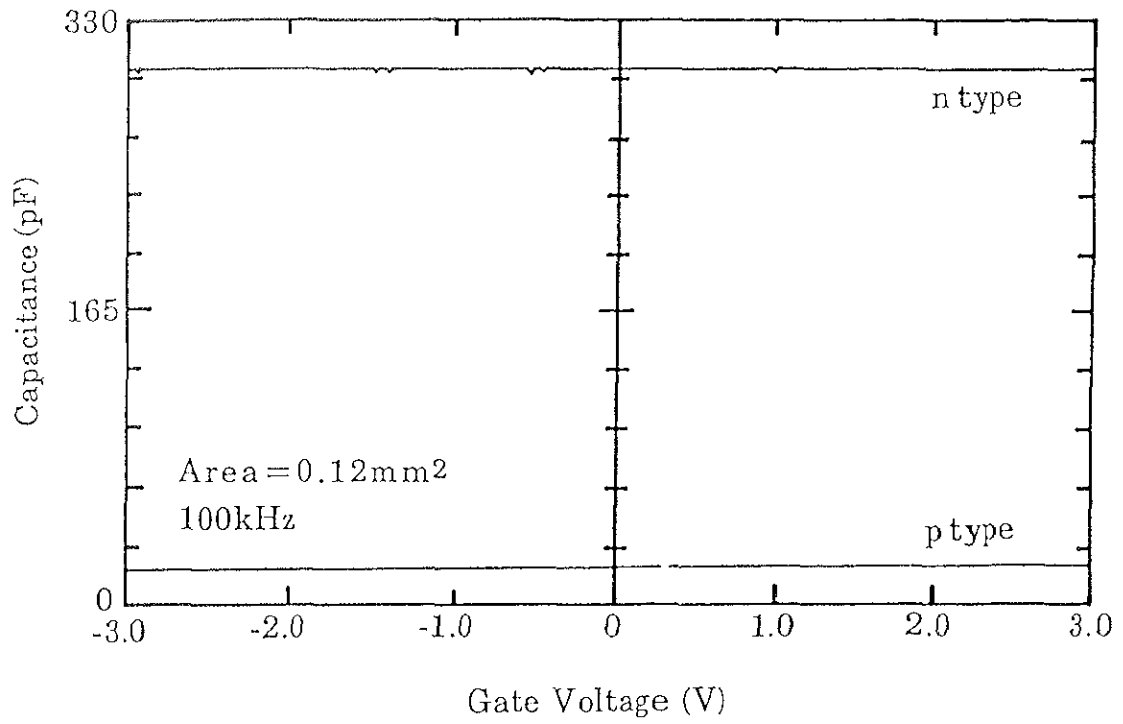


図4.12 100kHzで測定したときのC-V特性

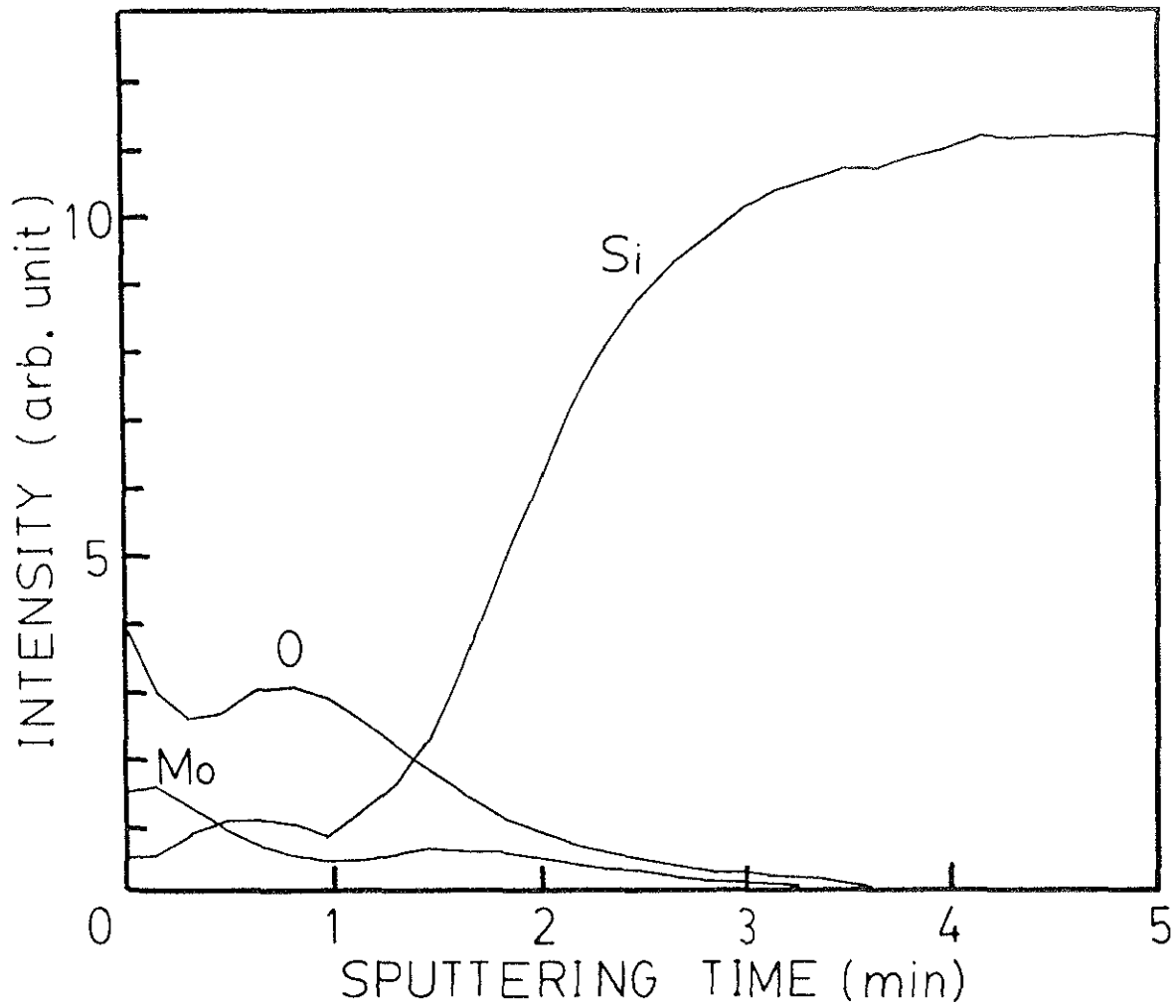


図4.13 MoO_xの深さ方向のオージェプロファイル

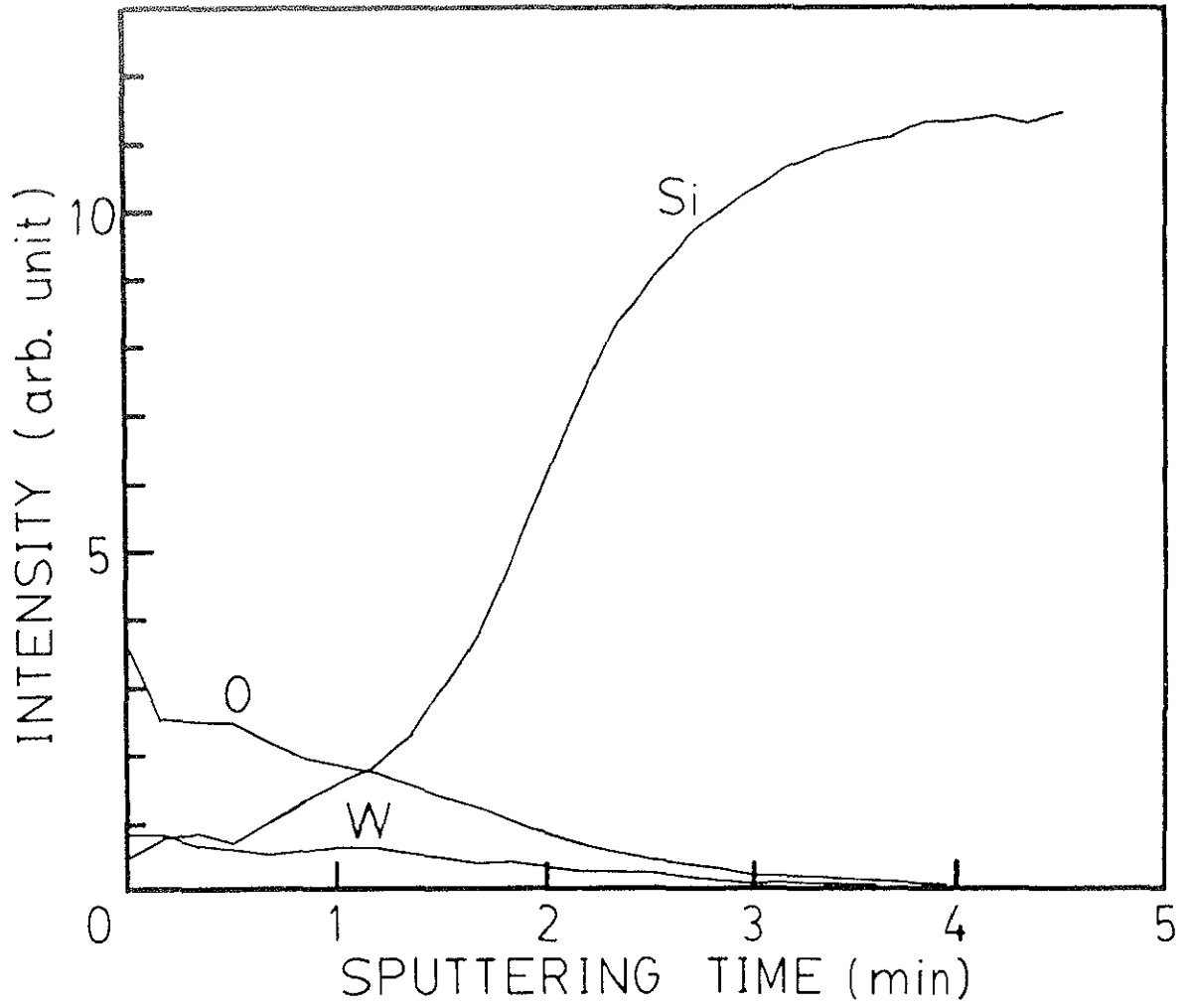


図4.14 WO₃の深さ方向のオージェプロファイル

れよりわずかであるが Ta_2O_5 の方が小さく、次いで WO_3 、 MoO_3 の順であることとほぼ一致する。

表4.2 酸化物の生成自由エネルギー

膜種	生成自由エネルギー (kcal/mol)	酸素原子当たりの 生成自由エネルギー (kcal/mol)
SiO_2	-192.4	-96.2
Ta_2O_5	-470.6	-94.1
WO_3	-182.5	-60.8
MoO_3	-162.0	-54.0

4.3 まとめ

反応性イオンビーム法では堆積条件を変化させても完全な Ta_2O_5 膜を得ることはできなかった。しかし、ダブルイオンビーム法により、酸素をイオン化し運動エネルギーを与え活性化すれば、化学量論的組成比の Ta_2O_5 に極めて近い膜を形成することができた。したがって、ダブルイオンビーム法は、従来、欠陥が存在しやすいために生成が困難とされていた種々の機能薄膜を低温で形成する手段として有望であることが確認された。また、ダブルイオンビーム法で形成した Ta_2O_5 膜の電気特性についても調べた。その結果、成膜後の N_2 雰囲気でのアニール温度が $500^\circ C$ の時にリーク電流は最小となった。これは、超LSI用のキャパシタ材料として十分に使用できる値であった。しかしながら、C-V特性に関しては、荷電粒子によるダメージのため、フラットバンド電圧が大きく負の方にずれていた。

また、ダブルイオンビーム法によれば、反応性イオンビーム法よりも、膜質に対する入射エネルギー依存性が大きく、 Ta_2O_5 膜に関しては、 $140eV$ 以上になると基板のSiがスパッタリングされ始め、膜中にSiが含まれることがわかった。逆に、 $100eV$ 以下では、本装置ではビームの発散が大きくなり、堆積速度が遅く、均一な膜が形成されなかった。また、 WO_3 と MoO_3 についても膜中へのSiの混入が観察され、その割合は Ta_2O_5 よりも多かった。この原因は、酸素原子1モル当たりの自由エネルギーで、ある程度、説明できることもわかった。

第4章 参考文献

- 1) J. Amano, P. Bryce, and R. P. W. Lawson, *J. Vac. Sci. Technol.*, **13**, 591(1976).
- 2) J. Amano and R. P. W. Lawson, *J. Vac. Sci. Technol.*, **14**, 831(1977).
- 3) P. C. Zalm and L. J. Beckers, *Appl. Phys. Lett.*, **41**, 167(1982).
- 4) P. Martin, R. Netterfield, W. Sainty, and C. Pacey, *J. Vac. Sci. Technol.*, **A2**, 341(1984).
- 5) D. M. Mattox, *Electrochem. Technol.*, **2**, 295(1964).
- 6) J. Ishikawa, Y. Takeiri, and T. Takagi, *Rev. Sci Instrum.*, **57**, 1512(1986).
- 7) G. S. Oehrlein, *J. Appl. Phys.*, **59**, 1587(1986).
- 8) S. Seki, T. Unagami, O. Kogure, and B. Tsujiyama, *J. Vac. Sci. Technol.*, **A5**, 1771(1987).
- 9) W. H. Knausenberr and R. N. Tauber, *J. Electrochem. Soc.*, **120**, 927(1973).
- 10) B. W. Shen, I. C. Chen, S. Banerjee, G. A. Brown, J. Bohlman, P. H. Chang, and R. R. Doering, *IEDM Tech. Dig.* p. 582(1987).

第5章 結 論

本論文においては、高融点金属イオンが安定に得られるイオン源を開発し、それを用いた複合イオンビームによる化学量論的組成が高度に制御可能な膜堆積装置を開発することにより、VLSIや高機能薄膜デバイスの新しい材料合成の可能性を実験的に示した。

すなわち、高密度の金属イオンビームが安定に、低ガス圧力動作で得られることを目的とし、マイクロ波放電とPIG放電を組み合わせたスパッタ型のイオン源を新しく開発した。このイオン源を用いることにより、高融点金属を基礎とした化合物薄膜のIBDが可能になった。また、ダブルイオンビーム法によって非晶質の Ta_2O_5 、 WO_3 、 MoO_3 薄膜を作製し、その構造や電気特性および成膜過程を明らかにした。また、反応性イオンビーム法および酸素イオンビーム照射法によって作製した非晶質 Ta_2O_5 薄膜の組成との比較もすることにより、ダブルイオンビーム法における膜形成機構の特徴を考察した。なお、高融点金属イオンによるイオンビームデポジションおよび複数イオンビームによる化合物の合成は本研究がはじめてである。これらの結果を整理して次に述べる。

1. PIG構造小型マイクロ波金属イオン源

(1) 本イオン源の特徴は、PIG放電により、電子の閉じ込め、スパッタリング、およびマイクロ波導入口の掃除がおこなわれ、アンテナを用いたマイクロ波放電をそれに重ね合わせるにより、電子のエネルギー供給源となり、また、強磁界により、放電維持用ガスイオンをプラズマ生成室に閉じ込めることである。

(2) これらの特徴によって得られる性能は、

- ① 動作ガス圧力（イオン源内） $10^{-4} \sim 10^{-3}$ Torr
- ② 消費電力 150W（マイクロ波電力 50W、PIG放電電力 100W）
- ③ イオン電流量（ Ta^+ 、 W^+ 、 Mo^+ ） 100～150 μ A
- ④ 金属イオン電流／放電維持用ガスイオン電流 40%

である。

(3) 本イオン源のオペレーションでは、マイクロ波による制御が可能な正抵抗領域とPIG放電々流による制御が可能な負抵抗領域があり、 Ta^+ イオンの生成には正抵抗領域の方が負抵抗領域よりも電力効率がよかった。また、両方の領域ともにマイクロ波の印加により動作が安定した。

2. ダブルイオンビームデポジション装置

(1) 屏風型のイオンビーム減速器により、二方向からのイオンビームを減速して同時に基板に照射することが可能になった。

(2) 本装置の性能は、

- ① イオンエネルギー 100~200eV
- ② 金属イオン電流 150 μ A
- ③ 反応性ガスイオン電流 200~500 μ A
- ④ 膜堆積中の真空度 2~8 $\times 10^{-7}$ Torr

である。

3. イオンビームによる膜形成

(1) ダブルイオンビーム法により化学量論的組成のTa₂O₅膜を形成することができた。

(2) Ta₂O₅薄膜の電気特性は、

- ① アニール温度500℃のときリーク電流が最小となった（-5Vのとき7.3 $\times 10^{-7}$ A/cm²）。
- ② C-V特性はフラットバンド電圧が大きく負の方にずれていることを示していた。

(3) イオンエネルギーと基板材料の膜中への混入量との関係は、酸化物では酸素原子1モル当たりの生成自由エネルギーに依存していることがわかった。

以上のように本研究は、新しい概念を用いたイオン源を提案することにより、高融点金属イオンビームを応用するプロセスを可能にし、その応用例として複数イオンビームによる化学量論的組成が高度に制御可能な成膜技術を開発し、VLSIや高機能薄膜デバイスの研究開発に一つの知見を加えたものとする。

付 録

A. マイクロ波発振器とイオンビーム

以下の実験は、京都大学で開発された『永久磁石を用いた引出電極通過磁気回路構造小型マイクロ波イオン源¹⁾(以下、京大型と略す)』を用いて著者が京都大学でおこなったものである。

マイクロ波イオン源を安定に動作させるためには、マイクロ波が安定にプラズマ生成室へ供給される必要がある。そのためには、マイクロ波は単一モードで連続発振にしなければならない。京大型のイオン源もマイクロ波はマグネトロン(2.45GHz)の発振出力を用いている。図A.1はマグネトロンの電圧(E_b)—電流(I_b)特性を示す。電源電圧を E_a で表わすと一般に、

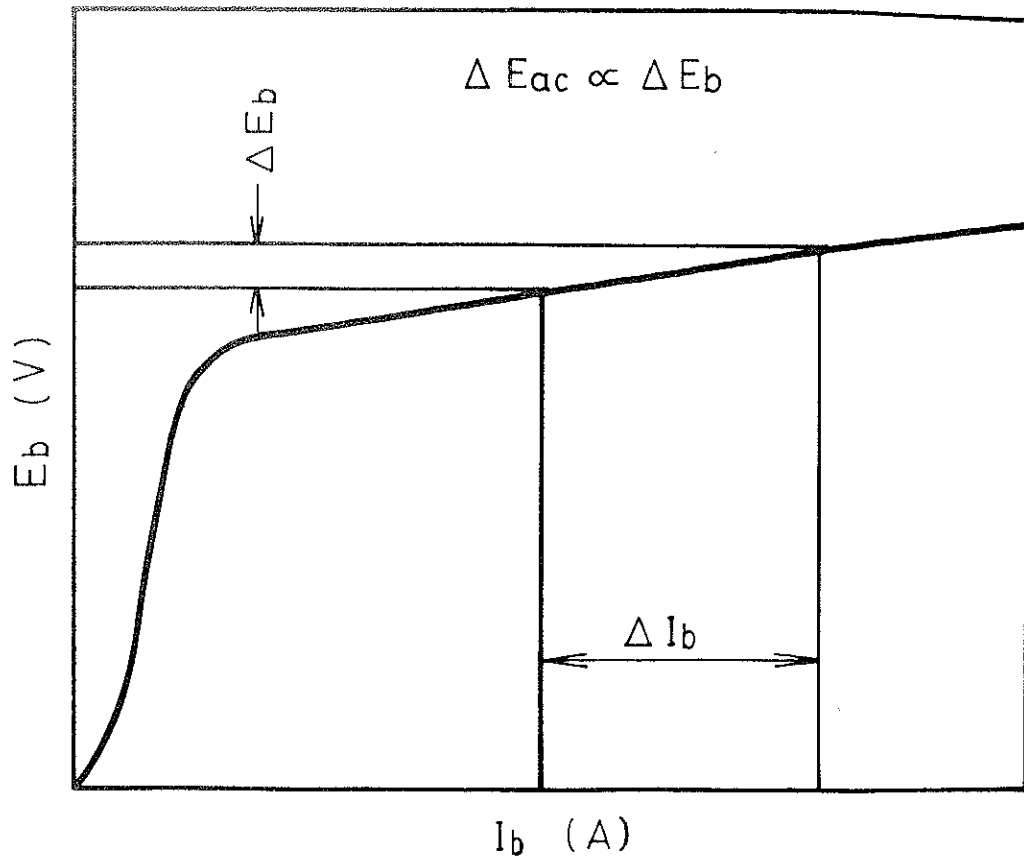
$$E_a \propto E_b \quad (1)$$

であり、 E の変動に従って I は幅広く変動する。発振出力は

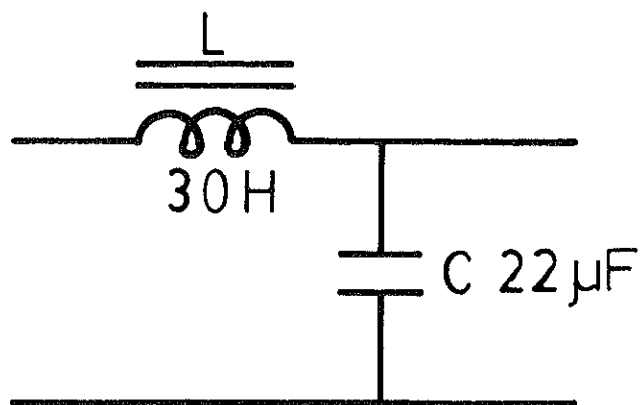
$$P \propto I_b \quad (2)$$

と表わせるので、わずかな電源電圧の変動で出力が大幅に変動する。すなわち、出力の変動によっては、イオン源室の放電に必要な出力以下にまで周期的に低下し、パルス状の放電になることがある。そこで、放電を連続にするためには、電源電圧のリップル含有率を極端に減らすか、定電流の安定回路にする必要がある。本実験で使用したマグネトロンの動作電圧が約5kVで、電流が最大200mAであるので、定電流回路で動作させるのは困難である。

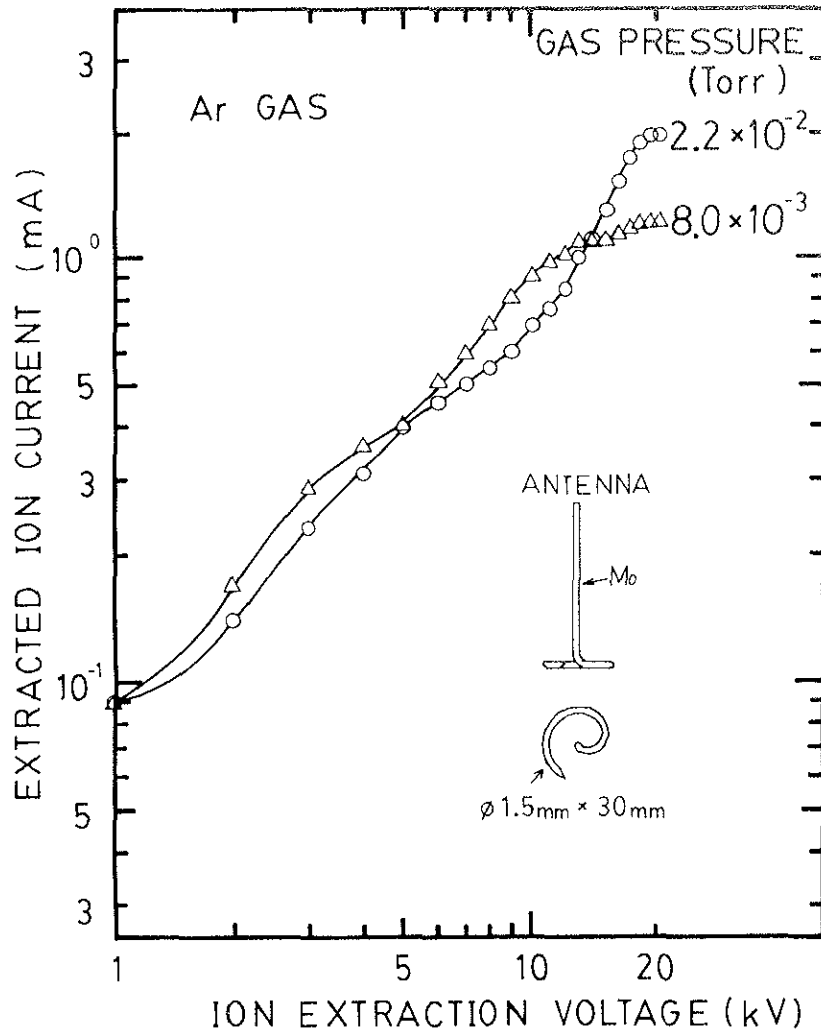
そこで、図A.2に示したチョーク入力型の平滑回路で動作させた。しかし、この定電圧電源では、スタブチューナーを用いて反射波が最小になるようにしても、イオンビーム電流値が最大の所では、パルスビームになる。図A.3はこのときのイオン引き出し電圧に対する引き出されたイオンビーム電流を示す。放電ガスはアルゴンを用いた。パラメータはイ



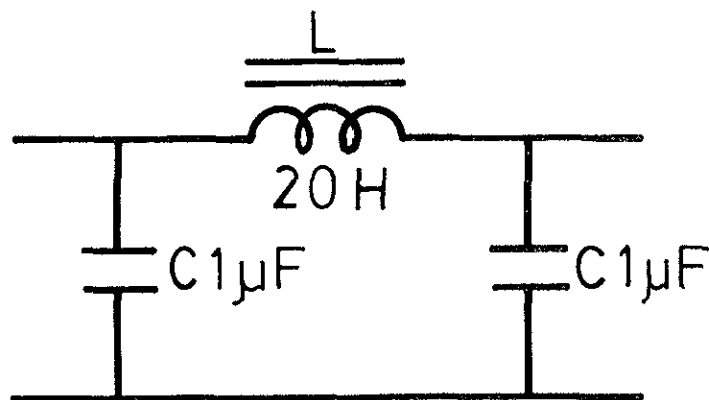
図A.1 マグネトロンの電圧 (E_b) - 電流 (I_b) 特性



図A.2 チョーク入力型の平滑回路



図A.3 図A.2の回路を用いたときのイオン引き出し電圧に対する引き出されたイオンビーム電流



図A.4 π 形の平滑回路

オン源内のガス圧力である。イオン引き出し特性の測定は、引出電極の下方約140mmの所にファラデーカップを設けて、引出電極を通過した後の全イオン電流を検出することによりおこなった。イオン引き出し電極のアスペク比は2/3（イオン引き出し孔の直径は ϕ 2 mm、引き出しギャップは3 mm）である。

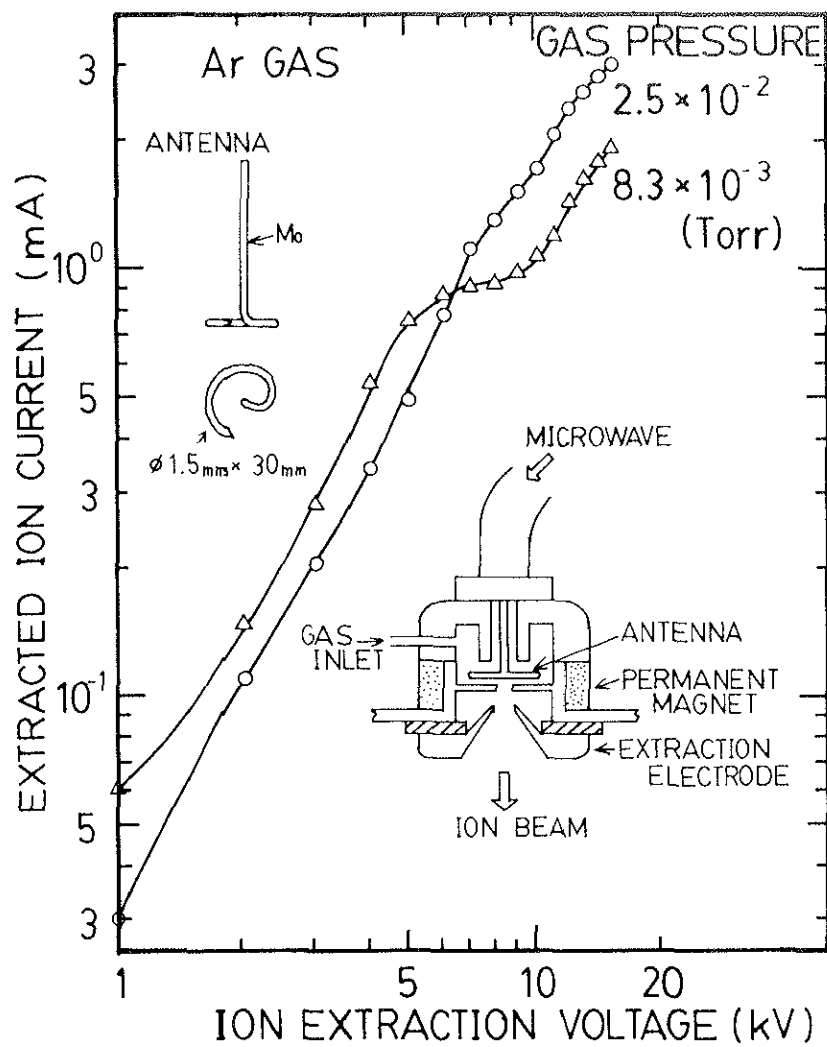
これに対して、図A.4に示した平滑回路ではスタブチューナーでマッチングを取ることに より、イオンビーム電流が最大のところで、イオンビームのリップルを $\pm 10\%$ まで低下させることができた。図A.5はこのときのイオン引き出し電圧に対する引き出されたイオンビーム電流を示す。イオン引き出し電圧が10kVのところで、スタブチューナーにより、イオンビームのリップルを $\pm 10\%$ に調整した。この結果から、マイクロ波発振電源のリップルを押えることにより、イオンビーム電流量も増加していることがわかる。

B. イオン源内の壁面及びアンテナでのイオン消滅

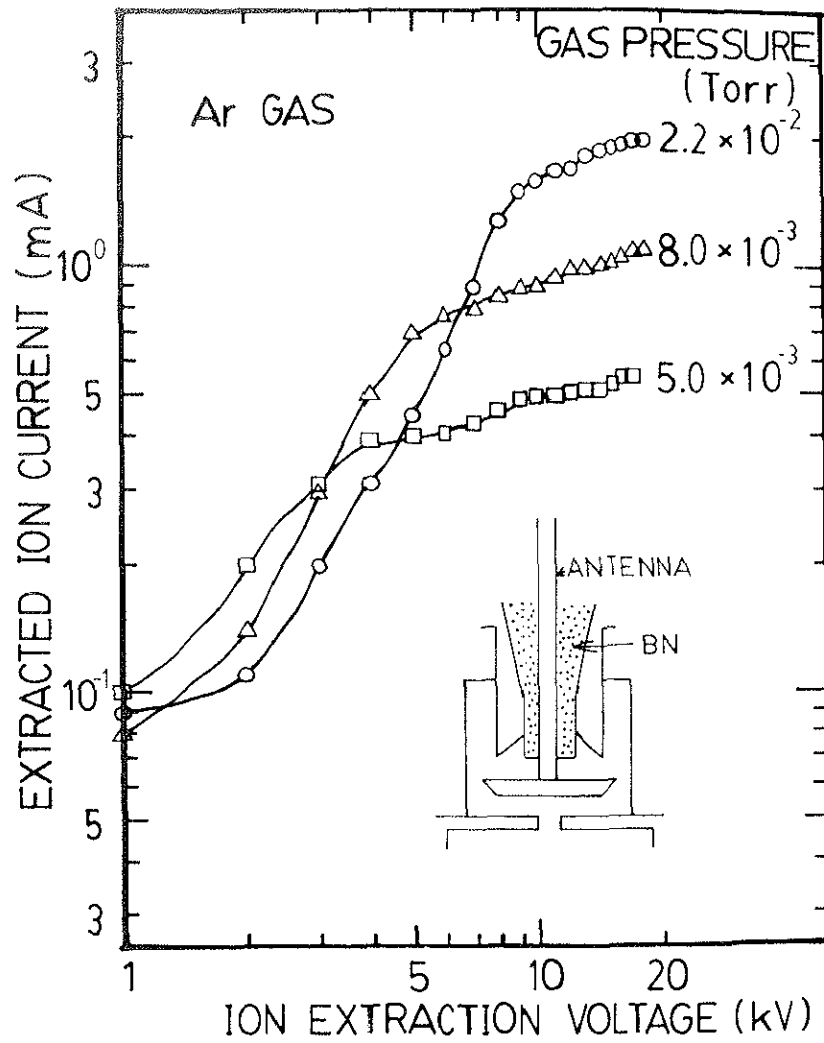
イオン源の性能を向上させるためには、プラズマ密度を高めることと、より低ガス圧力で動作させることが重要である。しかし、本実験に用いた京大型イオン源は、イオン引き出し孔の開口部の面積は 3 mm^2 と小さく、それに比べプラズマ室の壁面は約 650 mm^2 、アンテナの表面積は 141 mm^2 とかなり大きい。しかも、プラズマ室壁面およびアンテナは金属でできているので、イオンの消滅係数は1であり、金属面に衝突したイオンはすべて消滅する。このため、プラズマ生成室のガス圧力が低いときはプラズマ密度も低くなり、壁面へのイオン拡散により放電が維持できなくなる。そのため、プラズマ生成室の金属面をできる限り減らす必要がある。

図B.1はプラズマ室の壁面が約 650 mm^2 の金属面であるときのイオン引き出し電圧に対する引き出されるイオン電流を示す。また、プラズマ室の体積は約 1000 mm^3 であり、アンテナはT字型で表面積は 66 mm^2 である。本イオン源では軸方向に875 Gの磁界が加えられており、このときの電子のエネルギーを5 eVと仮定すると、ラーマー半径は約0.1 mmとなる。また、アルゴンガスのエネルギーを0.02 eVと仮定すると、アルゴンイオンのラーマー半径は約1.5 mmである。イオン温度が0.1~2 eVであるとするアルゴンイオンのラーマー半径は3~15 mmである。

図B.2はプラズマ室の壁面が約 330 mm^2 でそのうち金属面が47%であり、残りの部分は窒化ボロン（BN）で覆われているときのイオン引き出し電圧に対する引き出されるイオ



図A.5 図A.4のπ形の平滑回路を用いたときのイオン引き出し電圧に対する引き出されたイオンビーム電流

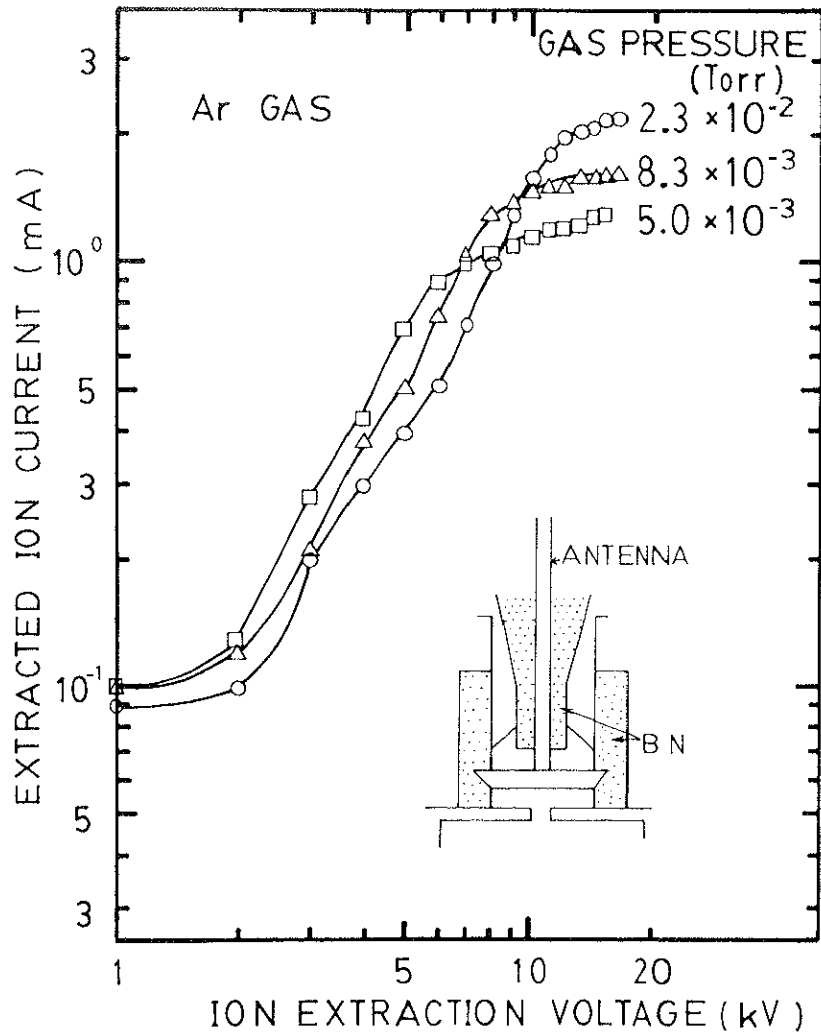


図B.1 プラズマ室の壁面が金属面であるときのイオン引き出し電圧に対する引き出されるイオン電流

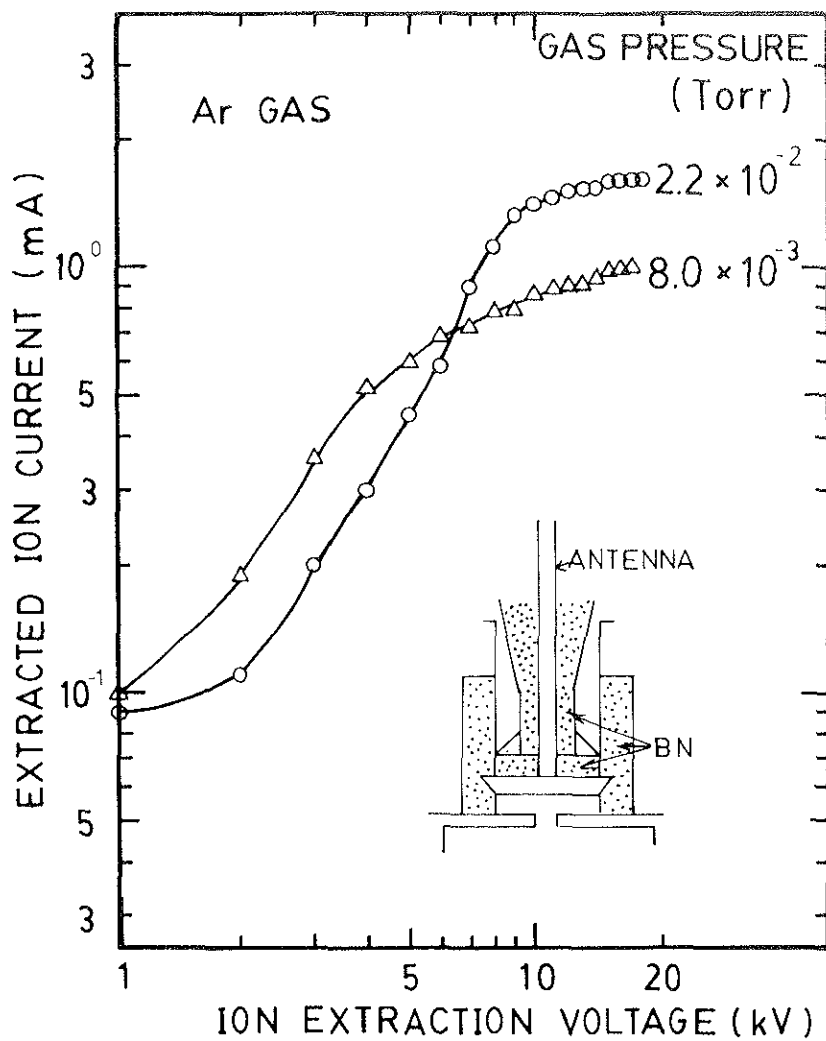
ン電流を示す。また、プラズマ室の体積は約 400mm^3 であり、アンテナは図B.1のときと同じである。プラズマ室のガス圧力が $5.0 \times 10^{-3}\text{Torr}$ のとき、引き出し電圧 15kV でイオン電流は 1.3mA 得られた。窒化ボロンを詰めない場合（図B.1）は同じ条件で 0.53mA である。また、プラズマ室のガス圧力が $2.2 \times 10^{-3}\text{Torr}$ のとき、引き出し電圧 15kV でイオン電流は 2.2mA 得られた。窒化ボロンを詰めない場合（図B.1）は同じ条件で 1.9mA である。すなわち、高ガス圧力のときは、窒化ボロンを詰めた場合、プラズマ室の容積が小さくなったために、マイクロ波のパワー密度が高くなり、プラズマ生成の効率がよくなるためと考えられる。これに対して、低ガス圧力のとき、窒化ボロンを詰めた場合にイオン電流が大幅に増加したのは、壁面でのイオン消滅が窒化ボロンでは金属よりかなり少なくなったためと考えられる。一般に、絶縁物では、イオン消滅係数は $10^{-1} \sim 10^{-4}$ である。

図B.3はプラズマ室の壁面が約 266mm^2 でそのうち金属面が29%であり、残りの部分は窒化ボロン（BN）で覆われているときのイオン引き出し電圧に対する引き出されるイオン電流を示す。また、プラズマ室の体積は約 240mm^3 であり、アンテナは図B.1のときと同じである。この場合は、図B.1のときよりもイオン電流量が全体的に減少している。また、プラズマ室のガス圧力が $5.0 \times 10^{-3}\text{Torr}$ 以下では放電が維持できなかった。これは、T字形アンテナ（横軸 13mm ）の場合、マイクロ波電界の強い所がアンテナの縦軸の途中にあるため、この部分に窒化ボロンを詰めたので、プラズマ室に供給されるマイクロ波電力が弱くなったためと考えられる。すなわち、アンテナの先端とイオン源の壁面が接近しているので、アンテナ上で、定在波ができて、電界の一番強い所は横軸の先端から縦軸にかけて $1/4$ 波長の長さの所にあると考えられる。そこで、中心に電界強度の高い所を持つてくるために、ヘリカル部の長さが $1/4$ 波長のアンテナを考案した。付録Aで示した図A.5はタンタルのヘリカルアンテナを用いたときのイオン引き出し電圧に対する引き出されるイオン電流を示す。タンタルの径が $\phi 1.5\text{mm}$ で、ヘリカル部の長さが 30mm であり、ヘリカル部の表面積は 141mm^2 である。

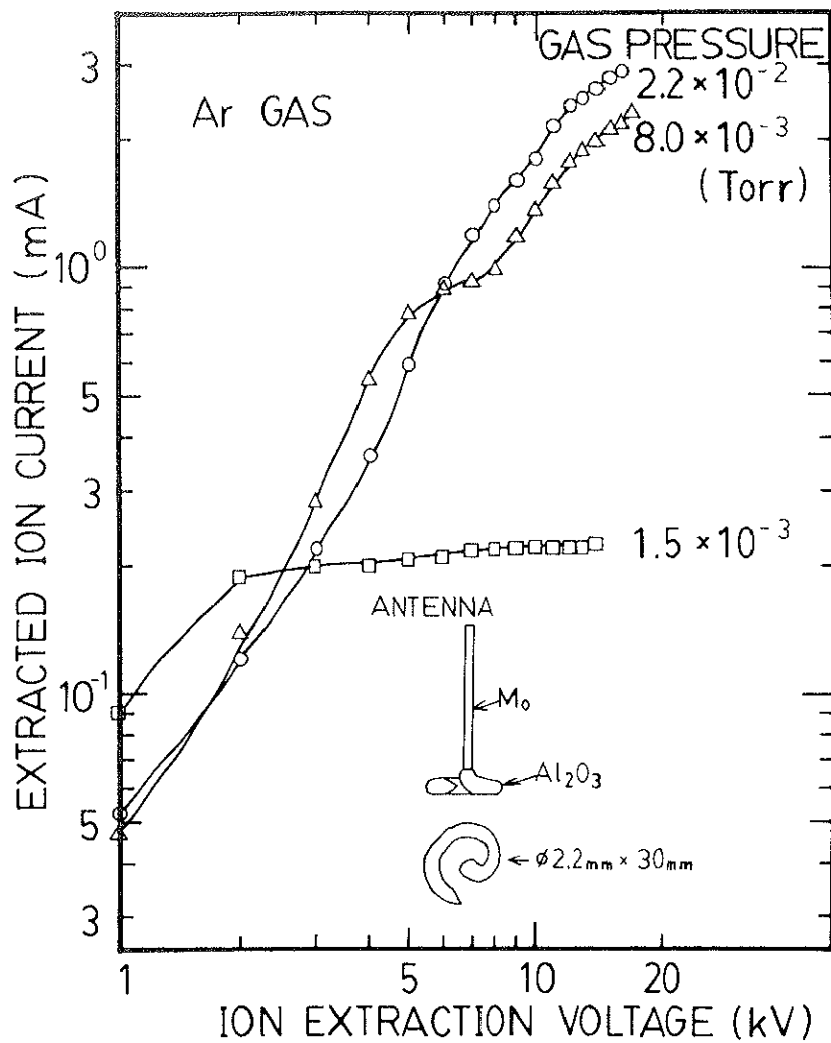
図B.4はモリブデンのヘリカルアンテナのヘリカル部にアルミナをコーティングしたものをを用いたときのイオン引き出し電圧に対する引き出されるイオン電流を示す。アルミナコート部の径が $\phi 2.2\text{mm}$ で、ヘリカル部の長さが 30mm であり、ヘリカル部の表面積は 207mm^2 である。プラズマ生成室にアンテナの金属面が露出しないようにしてある。金属アンテナに比べ、低ガス圧力でも放電が維持されているのがわかる。これはアンテナ表面でのイオン消滅が少なくなったためと考える。しかし、アンテナはかなり高温になってい



図B.2 プラズマ室の壁面の金属面が47%であり、残りの部分は窒化ボロンで覆われているときのイオン引き出し電圧に対する引き出されるイオン電流



図B.3 プラズマ室の壁面の金属面が29%であり、残りの部分は窒化ボロンで覆われているときのイオン引き出し電圧に対する引き出されるイオン電流



図B.4 モリブデンのヘリカルアンテナにアルミナをコーティングしたものをを用いたときのイオン引き出し電圧に対する引き出されるイオン電流

と思われるので、アルミナからの出ガスによるイオンも含まれており、実用化は困難である。

C. アンテナの形状と材質

C.1 アンテナの径

付録Aで示した図A.3は径 ϕ 1.5mm、ヘリカル部30mmのモリブデンアンテナを用いたときのイオン引き出し電圧に対する引き出されるイオン電流を示す。放電ガスはアルゴンを用いた。イオン引き出し電極のアスペクト比は2/3（イオン引き出し孔の直径 ϕ 2mm、引き出しギャップ3mm）である。このときの入力マイクロ波電力は26Wである。プラズマ室の圧力が 8.0×10^{-3} Torr以下では放電を維持することができなかった。また、ガス圧力 8.0×10^{-3} Torr、引き出し電圧15kVで、イオン電流は1.1mA得られた。

図C.1は径 ϕ 1.0mm、ヘリカル部30mmのモリブデンアンテナを用いたときのイオン引き出し電圧に対する引き出されるイオン電流を示す。測定条件は図A.3の場合と同じである。このときもプラズマ室の圧力が 8.0×10^{-3} Torr以下では放電を維持することができなかった。また、ガス圧力 8.0×10^{-3} Torr、引き出し電圧15kVで、イオン電流は1.3mA得られた。径 ϕ 1.5mmのアンテナを用いた場合に比べて、低ガス圧力領域ではイオン電流が相対的に高くなっている。

図C.2は径 ϕ 0.5mm、ヘリカル部30mmのモリブデンアンテナを用いたときのイオン引き出し電圧に対する引き出されるイオン電流を示す。測定条件は図A.3の場合と同じである。プラズマ室の圧力が 4.6×10^{-3} Torr以下では放電を維持することができなかった。すなわち、径 ϕ 1.0mmのアンテナを用いた場合よりも低ガス圧力で動作させることができる。しかし、ガス圧力 8.0×10^{-3} Torr、引き出し電圧15kVで、イオン電流は1.1mA得られた。径 ϕ 1.0mmのアンテナを用いた場合に比べて、低ガス圧力領域ではイオン電流が相対的に低くなっている。

以上の結果から、アンテナの径に関係なくマイクロ波はプラズマ生成室に供給されることがわかった。また、高ガス圧力領域では、イオン電流量にも変化はない。アンテナの表面積は、径 ϕ 1.5mmのときは 141mm^2 、径 ϕ 1.0mmのときは 94mm^2 、径 ϕ 0.5mmのときは 47mm^2 であり、径 ϕ 0.5mmのとき低ガス圧力で動作できたのは、アンテナの表

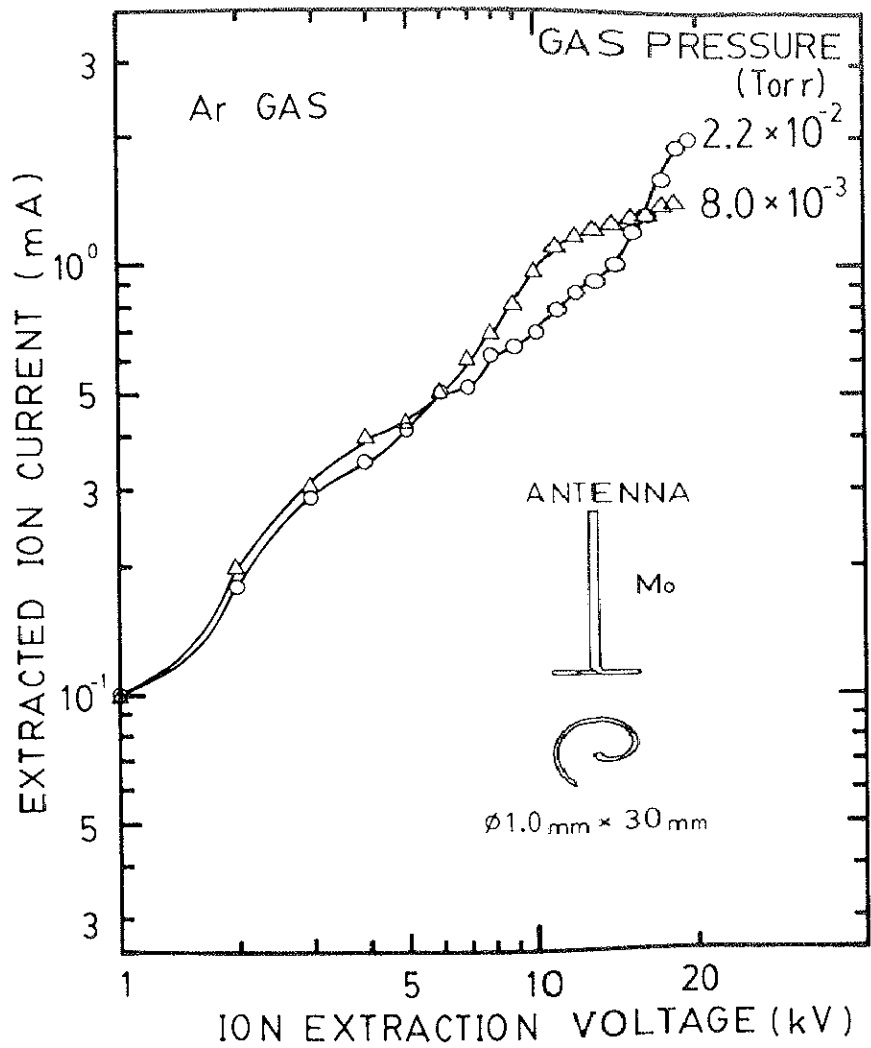
面積が少なくなったために、アンテナ表面でのイオン消滅が減ったためと考えられる。

C. 2 酸素プラズマに対するアンテナ材質

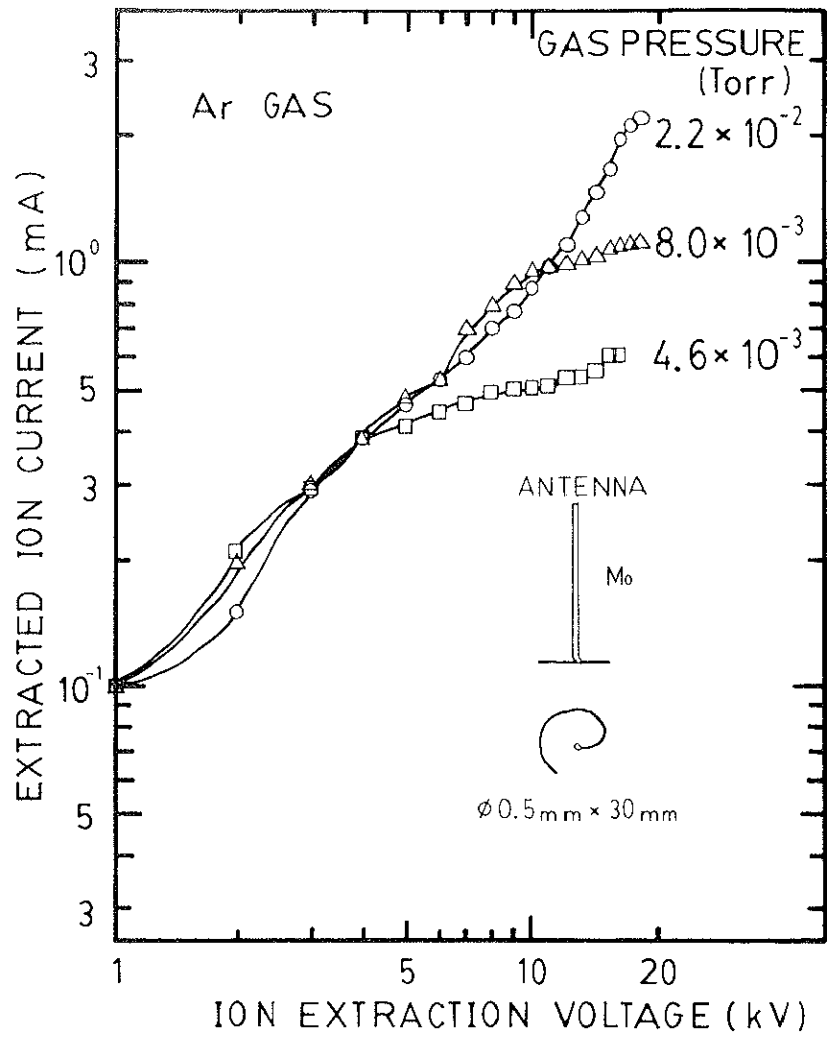
反応性ガスである O_2 を放電したときのイオン源の寿命試験をおこなった。図C. 3はいろんな材質のアンテナを用いた場合のイオン電流の時間変化を示す。図C. 3(a)は径 $\phi 1.5$ mm、ヘリカル部30mmのモリブデンアンテナを用いたときのイオン電流値の時間変化を示す。プラズマの生成と同時にガス圧力が約 $1/10$ になる。これは、酸素とモリブデンが反応し蒸気圧が高い酸化モリブデンができ、蒸発しプラズマ生成室に付着し、見掛け上真空度がよくなったためである。また、イオン電流が徐々に低下するのは、蒸着物により、イオン引き出し孔の径が小さくなるためである。この場合、約4時間でアンテナがなくなり、放電が停止する。最後にイオン電流が高くなるが、この原因はよくわからない。

図C. 3(b)は径 $\phi 1.5$ mm、ヘリカル部30mmのステンレス (SUS304) アンテナを用いたときのイオン電流値の時間変化を示す。6時間以上動作させても非常に安定しており、イオン電流値の変動はマグネトロン電源の入力変動のみである。使用後のアンテナは表面に極薄い黒錆びができており、それ以上内部への酸化を止める働きをしている。このため、アンテナの径は6時間以上使用してもほとんど変化はない。また、アンテナ表面は絶縁物になっていたが、プラズマの生成には影響がなかった。

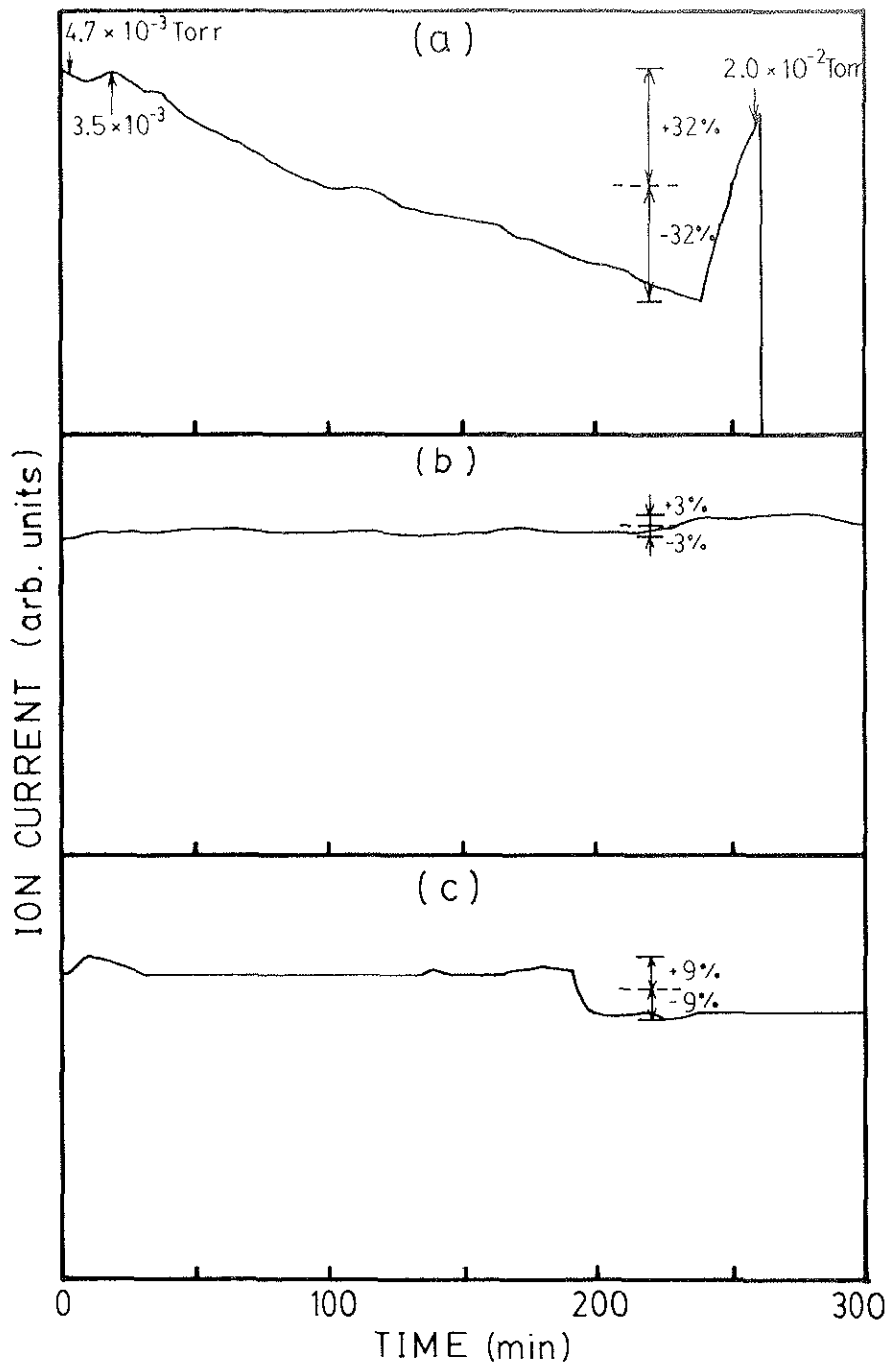
図C. 3(c)は径 $\phi 0.5$ mm、ヘリカル部30mmの白金アンテナを用いたときのイオン電流値の時間変化を示す。6時間以上動作させても放電が停止することはないが、イオン電流が低下する所がある。使用後のアンテナは溶けて、ヘリカル部が約 $\phi 2$ mmの球になっていた。これは、細い線を用いたので、熱伝導が悪くヘリカル部の先端から溶けたためと考えられる。そのため、ヘリカル部がある長さになったときにイオン電流が低下したものと推測できる。



図C.1 径 $\phi 1.0 \text{ mm}$ のアンテナを用いたときのイオン引き出し電圧に対する引き出されるイオン電流



図C.2 径 $\phi 0.5 \text{ mm}$ のアンテナを用いたときのイオン引き出し電圧に対する引き出されるイオン電流



図C.3 酸素プラズマ中で色々な材質のアンテナを用いた場合のイオン電流の時間変化。
 (a)Mo-ヘリカルアンテナ ($\phi 1.5\text{mm} \times 30\text{mm}$) を用いた場合、動作中のイオン源内の平均ガス圧力は 2.7×10^{-2} Torr、(b)SUS-ヘリカルアンテナ ($\phi 1.5\text{mm} \times 30\text{mm}$) を用いた場合、動作中のイオン源内の平均ガス圧力は 2.0×10^{-2} Torr、(c)Pt-ヘリカルアンテナ ($\phi 0.5\text{mm} \times 30\text{mm}$) を用いた場合、動作中のイオン源内の平均ガス圧力は 2.4×10^{-2} Torr

付録参考文献

- 1) J. Ishikawa, Y. Takeiri, and T. Takagi, Rev. Instrum. **55**, 449 (1984).

謝 辞

本研究の遂行と取りまとめにあたり、筑波大学教授 作道恒太郎博士には終始御懇切な御指導と御鞭撻を賜りました。ここに深く感謝の意を表します。

また、筑波大学教授 徳山巍博士、升田公三博士、同助教授 植寛素博士、工藤博博士には、本論文をまとめるにあたり、多大な御指導と御検討を賜りましたことを深く感謝いたします。

また、本研究遂行の途中、有益な御助言を賜りました京都大学名誉教授 高木俊宣博士、同助教授 石川順三博士、同助手 辻博司氏に厚くお礼申し上げます。

本研究の機会を与えていただくと同時に絶えざる御指導と御鞭撻を賜りました松下電器産業(株)生産技術本部長 伊藤輔二取締役、同生産技術研究所 高津勲所長、同研究開発部 中田邦夫部長、松下電器産業(株)半導体基礎研究所長 竹木豊樹博士に対し深甚なる感謝の意を表わします。

また、本研究の推進に対して、有益な御助言と御指導をいただきました、生産技術研究所 池田順治部長、水口信一課長、一柳高時課長、池田種次郎課長、半導体基礎研究所 広藤裕一主任技師に厚く感謝いたします。

終わりに、本研究の推進に熱心な御協力をいただいた半導体基礎研究所 大西照人氏、生産技術研究所 西谷正治技師、佐伯宏技師、関原敏伸技師、鈴木直樹技師に対してここに厚く御礼を申し上げます。

筑波大学附属図書館



1 00920 05329 9

本学関係