真空スパッタリング用イオン源とその応用*

田 村 一 二 三**

(昭和46年1月28日受理)

A New Ion Source for Vacuum Sputtering of Thin Films and Its Application

Hifumi TAMURA

(Central Research Laboratory, Hitachi Ltd. Kokubunji, Tokyo 185)

(Received Jan. 28, 1971)

The present author have been developed a new type ion source for vacuum sputtering which includes an electrostatic deflector. The ions emitted from the ion source are deflected by a set of deflecting electrodes, one of these is at the anode potential and the other at accelerating potential.

The ion beam has been used to sputter conducting and insulating target materials. From these experimental result it is found that the deposition rate of a given material is approximately proportional to the primary ion current for given accelerating voltage. Typical rate of deposition of nickel film at distance of 7 cm from the target with a 500 μ A, 5KV ion beam of 3 mm diam is $\sim 40 \text{ \AA}/\text{min}$.

As a practical application of the method, the nickel 40%—copper 54% alloy film for strain gauge was deposited by the two separate ion gun simultaneously. The content of these chemical composition was regulated by the primary ion beam current.

1. 緒 言

スパッタリング現象を利用して、金属および絶縁物の薄膜を生成させる方法は、現在実用的に広く利用されている。スパッタリング現象を利用した薄膜生成法は、蒸発粒子の運動エネルギーが大きいために、下地との付着力が強い¹⁾。薄膜の生成過程においてコアレッセンスの機会を増すなどの多くの望ましい特徴をもっていることが知られている。しかし一般に利用されているスパッタリング技術は、装置の簡単化とコスト低減の理由から、低真空、低エネルギーのグロー放電の雰囲気を使っている。このような低真空においては、スパッタ原子は、ガスとの衝突を多くくり返し、その結果、エネルギーを失ない方向がランダムになり、スパッタ膜の構造およびその特性にスパッタ過程がどのように効いているかを推定することが困難である。また従来の放電を利用したスパッタ技術においては、複数元素のスパッタ速度を個々に

測定しながら、所望の成分をもつ薄膜をうることが困難であった。

筆者は、上記のような観点から新しいスパッタリング用イオン銃を試作し、その諸特性について検討した。利用したイオン銃は、従来の Ardenne²⁾形を変形したものであり、イオン銃より放出したイオンビームを、一方を引き出し電極に他方をアノードに取りつけた2枚の偏向電極によりL形に曲げ、スパッタ材料に照射させる方式を採用した。同じ考えにもとづいた電子線蒸着用電子銃³⁾についてはすでに報告した。このイオン銃は、円筒状をしたイオン銃ユニットに二個取りつけられており、これにより二成分元素のスパッタリングをそれぞれ独立にかつ同時に行なえるようにした。次に試作したイオン銃ユニットを使い、スパッタ速度を一次イオン電流および二次電子電流の関数として測定し、両者が比例関係にあることを見出した。

2. イオン銃

イオン銃については、すでに種々の形式のものが開発され、実用化が行なわれている。しかし薄膜生成に利用

* 昭和45年4月1日 応物学会講演会において講演

** 日立中央研究所(東京都分寺市東恋ヶ窪1の280)

した例は少ない。従来利用されている代表的なイオン銃として、(1)高周波型と、(2)デュオプラズマトロン型イオン銃があるが、筆者は、(a)イオン源が小さくできる、(b)イオン電流密度が高い、(c)装置が比較的小形にできる等の理由から(2)を採用し、これに改良を加えた。

2.1 イオン銃およびイオン銃ユニットの試作

Fig. 1 (a), (b) に試作したイオン銃の断面図と外観写真を示す。その構成は、デュオプラズマトロン型イオン銃と放射したイオンビームを偏向するための偏向電極から成っている。デュオプラズマトロン型イオン銃については、すでによく知られているので、詳細については省略する。カソードにはイオン銃の過熱を考慮してBaO系の酸化物を採用した。アノードの孔径は、取り出しうるイオン電流に関係するので、0.3, 0.5, 1mmφの3種を作った。実験では主に1mmφを使用した。その他イオン銃の寸法はFig. 1に示す通りである。

イオン銃から放射したイオンビームは、二枚の偏向電極の電場により、L型に偏向させ、スパッタ材料に照射させる。この場合、アノードと引き出し電極の形状は、pierce形状になっていて材料上に、イオンビームを集束させるように設計した。Pierce⁴⁾は、平円板状のカソードから零エネルギー（初速度が零）で放出された荷電粒子流は、電極系を適当にすれば、平行ビームとして取り出せることを示した。この場合、電流密度 J (A/cm²)は、次式で与えられる。

$$J = \frac{5.44 \times 10^{-8} \phi^3}{M^{\frac{1}{2}} Z^2} \quad \dots\dots\dots (1)$$

ここに ϕ : 加速電圧 (V), M : イオンの質量数,

Z : アノードと引き出し電極間の有効距離 (cm)

イオンビームの偏向は、静電型を採用し、一方の偏向電極は、アノードに、他方の偏向電極は、引き出し電極にそれぞれ取り付けられている。したがってイオンビームの偏向量 Y は次式で与えられる。

$$Y = \frac{V_D \cdot L \cdot l}{2V \cdot d} \quad \dots\dots\dots (2)$$

ここに V_D : 偏向電圧(V), V : 加速電圧 (V)

d, l, L : 偏向板間隔, 偏向板の長さおよび偏向板中心よりターゲットまでの水平距離

一方、筆者の場合は、偏向電圧として加速電圧をそのまま利用しているので、 $V_D=V$ となり、偏向量 Y は、 $Ll/2d$ で与えられる。すなわちビームの偏向量は、偏向電極の形状、寸法のみ依存し、加速電圧が変動しても（例えば交流）偏向量は、常に一定になり、イオンビームの照射位置は不変である。

(a)

(b)

Fig. 1 Schematic diagram of newly designed ion gun.

Fig. 2に、上記イオン銃を二個取りつけたイオン銃ユニットの断面図面を示す。イオン銃ユニットは、独立に配置した二元素を同時にスパッタさせ、両者の混合膜を作することを目的として試作した。すなわち二つのイオン銃より放射したイオンビームは、それぞれ異なった場所に配置したターゲットを照射できるようになっている。イオン銃ユニットは、従来の蒸着装置のベースとベルジャの間に簡単に取りつけられるように設計した。Fig. 3にイオン銃ユニットを従来の標準蒸着装置に取りつけた状態を示す。イオン銃は、正面から見て左右に配置できるようになっている。

2.2 イオン銃の諸特性

イオン銃の特性はFig. 4に示す回路により測定した。従来のイオン銃との相違は、簡単化およびコスト低減の目的で、放電電源に交流を利用していることである。し

Fig. 2 Construction of newly designed ion gun unit.

Fig. 3 External view of the evaporater equipped with gun unit.

Fig. 4 The electrical circuit for the ion gun.

かも放電は100V以下で起動できるように電極類を設計した。

はじめにアノードとカソード間の放電々流と放射イオン電流の関係を測定した。アノード中間電極間の磁場強度を3KGおよび無磁場の場合について、イオン加速電圧を5KV、イオン銃部の真空度Pを 10^{-2} Torr (Arの

Fig. 5 The variation of the emission current with the arc current.

雰囲気)に保ち、放電々流 I_{arc} の関数として放射イオン電流を測定した結果を Fig. 5 に示す。放電々流と放射イオン電流の関係は、(1)無磁場の場合と、(2)中間電極とアノード間に軸方向磁場を加えた場合で異なり、(1)の場合放射イオン電流は、放電々流の増加とともに比例的に増加してゆくが、3KGの磁場を加えた(2)の場合には全体的に放射イオン電流が約2倍に増加し、かつ放電々流が1.6A以上では飽和する傾向を示す。(2)のイオン電流の飽和はプラズマより取り出せるイオン電流に制限があることを意味する。この実験から、放電々流として交流を利用した場合でも、従来の直流放電とはほぼ同じ特性をもつことがあきらかになった。

Fig. 6に加速電圧の関数として、放射イオン電流と到達イオン電流を測定した結果を示す。到達イオン電流は点線で示した。Fig. 6により、加速電圧 $V_{acc} < 2.5\text{KV}$ では式(1)に示したように、放射イオン電流 I_e は、 $V_{acc}^{\frac{3}{2}}$ にしたがって増加していることがわかる。しかし加速電圧が3KG以上になると飽和する傾向を示す。すなわちこの領域では、イオン銃は温度制限領域で動作していることを意味する。到達イオン電流 I_t は、引き出し電極を通過したイオン電流をファラデージにより測定したものである。イオン電流 I_t は、放射イオン電流が増加し、飽和値を示す3~5KVの範囲においても増加していることがわかる。これは加速電圧が高くなったために、イオンビームの集束性がよくなり、イオン電流効率が増加したことによるものと考えられる。

Fig. 7にイオン銃部の真空度と放射イオン電流の関係を測定した結果を示す。実験条件は、加速電圧を5KVにアノードと中間電極間の磁場Hを3KGに保った。実験により、放射イオン電流は、真空度に依存し、最適条件が存在することが明らかになった、すなわち $2 \sim 3 \times 10^{-2}$

Fig. 6 The variation of the ion current with the accelerating voltage.

Fig. 7 The variation of the emission current with the pressure in arc chamber.

Torrあたりにイオン電流の最大値が現われている。なおイオン銃部の真空度 P は、実測が困難なため、ガス流量と排気速度の測定から推定した。実験結果より、イオン源における電離度を計算すると $30 \sim 40\%$ になり、従来えられている $80 \sim 90\%$ に比較して低い値であるが、この原因についてはあきらかでないが、放電圧を交流にしたことが大きな原因であろうと考えられる。

3. 真空スパッタリングへの応用

3.1 一次イオン電流とスパッタ速度

試作したイオン銃ユニットを従来の真空蒸着装置にとりつけて、一次イオン電流とスパッタ速度の関係を実測した。以後の実験は、すべて A^+ イオンを用いて行なった。イオン銃部の真空度は、 $\sim 10^{-2}$ Torrであり、スパッタ材料およびサブストレートの配置してある真空鐘はスパッタ時常に 5×10^{-6} Torr以下に保った。したがっ

Fig. 8 The variation of the deposition rate of Cu, Ni, Mo films with the ion beam current.

てスパッタされた原子は、残留原子や分子との散乱は行なわれず、発生した時の初速度を保持して下地に到達する。一方従来のスパッタリング装置では、 $10^{-4} \sim 10^{-2}$ Torrのガス中でスパッタさせるので、スパッタ原子は、他原子および分子と衝突をくり返し、速度を失って下地に到達し、付着するものと考えられる。この点が従来のスパッタリングと真空スパッタリングの相違点である。

Fig. 8は加速電圧を5KVに保ち、照射イオン電流とスパッタ速度の関係を測定した結果を示したものである。スパッタ材料としては、高純度 (99.98%) の銅、ニッケル、モリブデンを用い、これを厚さ1mm、長さ15mm、幅10mmの長方形の板状に加工して使用した。スパッタ材料と下地との距離は常に70mmに保った。イオンビームのスパッタ材料への入射角は約20度である。実験では、入射一次イオン電流と二次電子電流を同時に測定したが、入射一次イオン電流と二次電子電流の比例性はきわめてよいことがあきらかになった。

スパッタ速度は、付着した膜の厚さをくり返し干渉計により測定し、えられた値をスパッタ時間で除して算出した。使用したくり返し干渉計の精度は $40\text{\AA}$ である。実測したスパッタ膜の厚さは数 $1000\text{\AA}$ であり、膜厚の測定誤差は5%以下である。Fig. 8から、次のようなことがあきらかになった。

- (1) スパッタ速度は、入射一次イオン電流および二次電子電流に比例し、入射一次イオン電流および二次電子電流を検出ることにより、スパッタ速度を精度よく測定できる。
- (2) スパッタ速度は、銅、ニッケル、モリブデンの順に遅くなっており、すでに測定されているスパッタリング効率 (Atoms/ion) の値の相対比にほぼ一致していることがわかる。

Fig. 9 は、一次イオン電流を $400\mu\text{A}$ に保ち、一次イオンのエネルギーの関数として、スパッタ速度を測定した結果を示したものである。イオンビーム電流の調整は放電圧を変えて行なった。イオン電流を一定に保ち、加速電圧を 1KV から 7KV まで変化させるとスポット径は約 20% 減少することが観測されたが、この種の実験には余り影響がないものと考えられる。Fig. 9 から、一次イオン加速電圧が 4KV までは、スパッタ速度は一次イオンのエネルギーに比例して増加してゆくが、 4KV 以上ではスパッタ速度が飽和する傾向を示す。この原因についての詳細は不明であるが、定性的には、イオンのスパッタ材料中への透過が考えられる。

3.2 二成分薄膜の生成

複数成分の薄膜を生成させる場合、複数成分の化合物材料を蒸着またはスパッタさせるとそれぞれの元素の蒸発速度およびスパッタ効率の差により、材料とは成分比の異なる薄膜が生成されてしまう。また複数成分を独立に蒸発させる方法もあるが、この場合には、個々の蒸発速度を独立にかつ精度よく制御する方法がない。このことは薄膜工学における一つの問題点とされている。

ここでは、二成分薄膜の生成について、実験結果を記す。3.1 に記した実験結果により、スパッタ速度は一次イオン電流に比例して増加することがわかった。この結果を用いて、二成分元素のスパッタ速度を独立に制御して、所望成分および膜厚の薄膜を生成させる方法について予備実験を行なった。実験方法は、Fig. 2 に示した原理に従って、同時に二つのイオン銃を働かせ、近接して配置した二つのスパッタ材料にそれぞれ別々に照射し、これを同一基板上にスパッタさせる。この場合、目標にしているスパッタ速度に合うように、スパッタリング効率を考慮して、一次イオン電流をきめる。このように両者の一次イオン電流がきまったのち、シャッターを開き、あらかじめきめた膜厚になるように一定時間だけスパッタさせる。

上記のような方法を用いて、ストレンゲージの材料である銅とニッケルの混合膜を生成させたので、以後これについて記す。ストレンゲージとして要求されることは

温度係数が小さいことおよびゲージ率が大きいことであり、この条件をみたす材料として従来から銅 54% 、ニッケル 46% の化合物が使われていた。スパッタ材料としては、3.1 の実験に使用したものと同じ純度の銅とニッケルを用いた。実験条件は、スパッタ材料と下地との距離を 70mm に固定し、銅材料に、 $400\mu\text{A}$ 、ニッケルに $170\mu\text{A}$ のイオンビームを照射した。これらの値は、Fig. 8 の実験結果と両者の混合比を考慮してきめた。スパッタ時間は約 5 分である。膜厚は $6000\text{\AA}$ 程度であり、スパッタ速度から予想した値にかなり近い。

次にこのようにして生成させた薄膜について、抵抗温度係数の測定を行なった。その結果を Fig. 10 に示す。Fig. 10 には銅 54% 、ニッケル 46% の化合物を蒸着材料として電子線蒸着した場合と従来の方法でスパッタさせた場合の膜の温度特性も同様にプロットしてある。また参考のためにバルク材料の抵抗-温度特性も示してある。

Fig. 11 に用いた材料、電子線蒸着した膜および真空スパッタした膜をイオンマイクロアナライザ⁵⁾により分析した結果を示す。この分析結果から、電子線蒸着により作製した膜では分溜蒸発が起り、材料との組成変化がいちじるしいが、このようなプロセスで真空スパッタ法でえられた膜は、ストレンゲージ用バルク材料とほとんど同じ組成をもつことがわかった。

以上の実験結果により、従来の電子線蒸着法およびス

Fig. 9 The film deposition rate as a function of energy for bombardment by argon ion.

Fig. 10 The variation of the resistance with the temperature.

パッタリング法により化合物の蒸着を行なうと、分溜蒸発およびスパッタリング効率の差違によりもとの材料と組成および性質のいじりく異った膜がえられるが、真空中でスパッタ率に応じて、スパッタさせる真空スパッタ法ではほぼバルク材料と同様の組成および温度特性

をもつ膜がえられることがあきらかになった。

3.3 薄膜生成への散乱電子の影響

イオン銃の使い方として(1)イオン銃のアノードを接地電位で使用し、スパッタ材料に負の高圧を印加する場合および(2)イオン銃を正の高圧に、スパッタ材料を接地電位で利用する場合がある。(1)はイオン銃を接地電位に保ち利用するため高圧端子が一本ですみ、装置が簡単になる特徴があり、われわれはこれを採用した。しかし(1)では発生した二次電子が加速されて下地に到達し、悪影響をおよぼす。Fig. 12に(1)の場合にえられた銅、ニッケル、モリブデン、薄膜の表面に発生した放電による亀裂模様を示す。下地としてはスライドガラスを用いた。その他の条件は図中に示した通りである。亀裂の模様は物質の種類、スパッタ速度および一次イオンのエネルギーなどにより異なり複雑である。このような二次電子の悪影響は下地を電氣的に絶縁することによりさげられることが実験からあきらかになった。すなわち下地に帯電しても接地部との間で放電を起こさなければこのような亀裂は生じない。一般に軽元素物質は、二次電子放射が少

Fig. 11 Mass spectra of Ni-Cu alloy.

Fig. 12 Micrograph of a Lichtenberg patterns of a vacuum sputtered 1000Å films deposited on quartz substrate at the room temperature.

ないためその影響も比較的少ない。二次イオンの薄膜生成への影響についてはすでに詳細を報告した⁶⁾。二次イオン電流は二次電子電流に比較してきわめて少く(10^{-2} ~ 10^{-3} 程度)、この種の実験では無視できるものと考えられる。(2)の場合、二次電子は発生するが基板には到達できず薄膜生成への悪影響はない。

4. 結 言

新しい真空スパッタリング用イオン銃の試作とその応用について記したが、その内容を要約すると次のようになる。まず装置に関しては

- (1) 真空スパッタリング用イオン銃は放電々源として商用周波数の交流が利用できるので、装置の簡単化およびコスト低減が期待できる。
- (2) スパッタ材料および下地から直接イオン源が見えないように設計しているので、イオン源からの汚染はない。
- (3) イオンビームの偏向は、加速電圧をそのまま利用しているので、加速電圧の変動があってもビームの照射位置は不変である。

などの特徴がある。次に応用に関しては

- (a) 物質によるスパッタ率 (Atoms/ion) が一定しているので、スパッタ速度を一次イオン電流および

二次電子電流により測定できる。

- (b) (a)の原理にもとづき、二元素のスパッタリング速度を制御することにより、所望の成分比に近い値をもつ二成分薄膜(銅-ニッケル合金膜)をうることができた。

- (c) イオン銃を接地電位に、スパッタ材料に負の高圧を印加する方式では二次電子が薄膜生成に悪影響を与えるが、下地を電氣的に絶縁することにより簡単にさけられることがあきらかになった。

おわりにのぞみ、ご指導いただいた日立中研 片桐信二郎博士に深謝致します。

〔文 献〕

- (1) R. B. Bellser : Phys. Rev., **92** (1953) 1098.
- (2) M. Von Ardenne : Tabellen der Eleckfronen-physik, Ionephysik und Übermikroskopie, **1** (1956) 635.
- (3) 田村 : 応用物理, **38** (1969) 574.
- (4) J. R. Pierce : Theory and Design of Electron Beams Van Hostrand.
- (5) K. Ogata, T. Hayakwa : Recent Developments in Mass Spectroscopy (1969).
- (6) 田村, 森, 木村 : 真空, **9** (1966) 17.