アルミニウム合金製分子線エピタキシー容器の 真空性能*

末光 真希**・宮本 信雄**

(昭和61年4月1日 受理)

Vacuum Property of Aluminum Alloy MBE Chamber

Maki SUEMITSU and Nobuo MIYAMOTO

(Research Institute of Electrical Communication, Sendai)

(Received April 1, 1986)

A molecular beam epitaxy (MBE) chamber has been constructed with aluminum alloy featuring an ethanol lathing in its inner surface treatment. It showed a remarkable low outgassing rate which is less than 10^{-13} torr l/s cm^2 after a $100^\circ C$, 45 hour bakeout. Reflecting this, the chamber can be pumped down to the order of 10^{-10} torr in 20 hours without bakeout and in 6 hours with bakeout. From these excellent vacuum performance, aluminum alloy UHV can claim to be a key technology for the industrialization of MBE.

1. はじめに

分子線エピタキシー (MBE) 技術は、成長中の基板温度を低減でき、その結果エピタキシャル層の厚さ、不純物密度、およびその空間分布を高精度で制御できる方法として注目されている。しかし現行の MBE システムはスループット・レート (単位時間あたりの処理能力) に難があり、これが MBE の工業プロセスへの進出を阻むひとつの要因となってきた。スループットを向上させるには、エピタキシャル成長速度の増大と成長に必要な超高真空領域に到達する時間の短縮とが必要である。このうち前者については電子銃の改良などで現在 $1/3 \mu m/min$ といった CVD なみの成長速度が得られるようになってきた¹⁾。後者についてもロードロックシステムの採用で一時間に2枚程度の成長は可能になった。しかし、システム全体の真空立ち上げ、蒸発源の原料交換、あるいはロードロック方式における試料導入後の真空回復時間の短縮を計るには、ガス放出のより少ない材料を用いた真空システムが望まれる。さらに実際のプロセスの現場では装置全体の重量、コスト、あるいは運転経費とい

った経済的な要素も重要である。こういった点から MBE 法の実用化には、従来のステンレス鋼を中心とした超高真空システムに代わる新しい超高真空システムが必要であるといえよう。

筑波研究学園都市・高エネルギー物理学研究所の石丸らによって開発されたアルミニウム合金 (以下アルミと略記) 超高真空システムは、その本来の目的であった低残留放射化性のほかに、(1)低温、短時間の脱ガス処理によって低ガス放出率が得られる、(2)軽量、(3)低コスト、といった特長を示して上に述べた MBE 真空に対する要請に答え得る可能性を持つことが明らかになってきた。我々はこのアルミ真空の持つすぐれた性能に着目し、これを用いた MBE 装置の試作研究を行っているが、本報告ではこのアルミ真空システムを用いた MBE 装置について、その真空性能を中心に報告する。

2. アルミニウム合金の表面処理

アルミ合金の真空系においては適切なアルミ合金の選択とその表面処理が重要である。合金の種類については比強度、溶接性、そして揮発性不純物を含まないこと、などの観点から選択されねばならない。本 MBE 装置ではアルミニウム-マグネシウム-シリコン系合金

* 昭和60年10月4日 応用物理学会講演会において講演

** 東北大学電気通信研究所 (仙台市片平2-1-1)

Fig. 1 Auger electron spectroscopy depth profile of (a) as received and (b) as lathed with ethanol aluminum-alloy A6061. Percentages were calculated using the values of relative Auger sensitivities for each element.

(A6063-T5, A6061-T6) とアルミニウム-マンガン系合金 (A3003-H14) を容器壁材に、またアルミニウム-銅系合金 (A2219-T87) をフランジ材に用いた。

アルミ合金の表面については、できるだけ薄くてち密な表面酸化層を形成することが重要である。石丸たちはこの目的のために特殊押し出し法と呼ばれるパイプ押し出し技術を開発した。しかしこの方法では MBE 装置に必要とされる直径 350 mm といった大口径の管は成型できない。そこで本装置では A6061 の板材をロール成型し、これをエタノールを用いて内面切削して所望の表面を得ることにした。Fig. 1 は as received 表面 ((a)) および今述べたエタノール切削表面 ((b)) についてオージェ分光法を用いて深さ方向分析を行ったものである。酸素ピーク強度の半減する位置を表面酸化膜厚の目安²⁾とすると、エタノール切削することによって酸化膜厚は約 6 分の 1 に減少していることがわかる。切削液としては

Table 1 Thickness of the surface oxide layers of the surfaces lathed with three different lathing liquids. Thicknesses are represented as sputtering time required to half-decrease the surface oxygen Auger peaks. The “pure ethanol” sample corresponds to the one shown in Fig. 2(b) although their sputtering rates and hence the sputtering times are different

lathing liquid	oxide thickness (min.)
pure ethanol	0.8
50% ethanol dilute with water	2.3
lathing oil	2.8

純粋エタノールのほかにエタノール 50% 希釈水と通常切削油についてもその効果を見た (Table 1)。油切削を行った試料は切削後トリクロルエチレン、セトン、エタノールの超音波洗浄にて脱脂を行った。しかし表からわかるように純粋エタノール以外の切削法では酸化膜厚が約 3 倍になっている。また油切削試料は切削後に入念な脱脂を行ったにもかかわらず、酸化膜全体にわたって炭素が入り込んでいることがわかった。これらの結果から本装置では純粋エタノールを切削液に採用した。

3. ガス放出率測定

こうしてエタノール切削による表面処理を施して MBE 容器を製作した。MBE 容器は高さ 70 cm、内径 34 cm の成長室と長さ 28 cm、内径 20 cm の試料交換室から成っており、全内容積は約 85 l、内表面積は $1.6 \times 10.4 \text{ cm}^2$ である。この MBE 容器の真空性能を評価するためにガス放出率測定を行った。Fig. 2 はその測定ブロック図で、容器側圧力を p_1 (torr)、ポンプ側圧力を p_2 (torr)、オリフィスのコンダクタンスを C (l/s)、容器内表面積を A (cm^2) とすると、ガス放出率 q (torr l/s cm^2) は

$$q = (C/A) (p_1 - p_2) \quad (1)$$

と与えられる。本測定における C ($\phi 6 \text{ mm}$) は 1.5 l/s であった。

Fig. 3 はこうして求めた MBE 容器のガス放出率である。排気開始前、容器は約 4 時間大気にてリークされた。図からわかるように排気開始後約 20 時間で 10^{-11} torr l/s cm^2 台に達している。この容器を 140°C で 45 時間ベークするとガス放出率はさらに二桁半下がって 1.5×10^{-13} torr l/s cm^2 になった。

この状態の MBE 容器を一時間大気にてリークし再び排気したものが Fig. 4 である。今度は 100°C 45 時間のベークを行ったところ、 q は 5×10^{-14} torr l/s cm^2 にまで下がった。ベーク温度を下げたにもかかわらずえつ

$$q = \frac{C}{A} (p_1 - p_2) \text{ torr} \cdot \text{l} / \text{s} \cdot \text{cm}^2$$

Fig. 2 Measuring system of the outgassing rate.

てガス放出率が下がったのは、排気開始前の大気圧リーク時間の違いによるものと思われる。本測定におけるオリフィスコのコンダクタンスは先に述べたように 1.5 l/s であるが、このほか実際には真空ゲージ (B-Aゲージ) 自体にも約 1 l/s 程度のポンピング作用があり、このため上のガス放出率の結果には二倍程度の誤差が見込まれる。これらを考慮して本装置のガス放出率は 10^{-13} torr l/s cm² 以下であるということができよう。また Fig. 3 と Fig. 4 の結果からアルミ真空容器の場合はベーク温度を 100°C にして充分であるということがわかる。ここで行われた 45 時間というベーク時間はベーク期におけるガス放出の飽和を見るために採用されたものである。しかし Fig. 3, Fig. 4 のベーク時のガス放出がほぼ最初の 24 時間で完了していることから、より少ないベーク時間でも同様の結果が期待される。実際、後に排気特性で示すようにこれよりはるかに短いベーク時間で超高真空に排気されることが確認されている。

Table 2 に長時間のガス放出率測定から求めた q の時間依存性とこれより求めた吸着等温線、吸着量、平均吸着時間、および吸着エネルギーを示す。表には比較のためにステンレス鋼についての値も併せて記した³⁾。ステンレス鋼とアルミの一番の違いは平均吸着時間 τ にみられ、アルミはステンレス鋼に比べ二桁以上も τ が小さい。 τ は脱離の活性化エネルギー E_d と

$$\tau = \tau_0 \exp (E_d / RT) \quad (2)$$

の関係で結ばれており、アルミの τ が小さいことはこの

Fig. 3 The outgassing rate with a 140°C, 45 hour bakeout.

Fig. 4 The outgassing rate with a 100°C, 45 hour bakeout.

Table 2 Surface parameters of the MBE chamber

	Outgassing rate $q(t)$ (torr l/s cm ²)	Adsorption isotherm $f(q)$ (molecules/cm ²)	Surface coverage ^a (molecules/cm ²)	Mean residence time ^a τ (s)	Adsorption energy ^a E_d (kcal/mol)
present system	$4.09 \times 10^{-5} t^{-1.15}$	$3.36 \times 10^{16} q^{0.129}$	1.85×10^{15}	1.94	17.8
stainless steel (virgin)	—	$5.32 \times 10^{17} q^{0.142}$	2.44×10^{16}	487	21.3

^a At 10 h after initial pumpdown.

Fig. 5 Pumpdown curve without bakeout.

E_d が小さいことの反映であるともいえる。これらをいいかえると吸着分子にとってアルミ表面は「熱い」表面であるということであり、低いベーキング温度で十分なガス出しが後われることもこの点から理解される。

4. 排気特性

前節で本 MBE 容器がステンレス鋼に比べ桁違いに二桁低いガス放出率を示すことがわかった。そこでこれを実際の使用条件の下で排気したのが Fig. 5 の排気特性である。図中の挿入図にあるように、容器は油拡散ポンプ (DP) でバックアップしたターボ分子ポンプ (TMP) と液体窒素シュラウンド (アルミ製) を装着したチタンサブリメーションポンプ (TSP) によって排気された。排気開始後 2 時間で容器は 10^{-7} torr 台に排気され、さらに 3 時間で 10^{-8} torr 台に入る。そして排気

Fig. 6 Pumpdown curve with 1.5 hour bakeout.

開始後約 20 時間の時に TSP シュラウンドに液体窒素を導入すると圧力は 10^{-10} torr 台に入り、最終的に 7.4×10^{-10} torr になった。これら一連の排気過程で一切ベーキングを行っていないことを強調しておく。

一方、現実の半導体プロセスでは、多少のベーキングを行ってもよいからできれば数時間のうちに 10^{-10} torr 台に入れたい、という要求がある。そこでどれだけ短時間のうちに 10^{-10} torr 台に入るかを見たのが Fig. 6 である。排気前、容器は大気 (湿度 70%) にて一時間リークされた。排気開始 30 分後にベーク・ヒータをイオンすると、その一時間半後に容器温度は 88°C に上昇している。ここでヒータをオフするとその約 1.75 時間後には容器温度が 27°C に冷却されるので、TSP シュラウンドに液体窒素を導入すると圧力は 10^{-10} torr 台に入った。排気開始後 6 時間 20 分である。

ベークなしで大気圧排気後23時間、あるいは90°C1.5時間のベークングで大気圧排気後約6時間でそれぞれ 10^{-10} torr 台に入るといふ本真空系の排気特性はステンレス鋼を用いた真空系にはないすぐれたものである。今回エタノール切削による表面処理を行ったアルミ真空容器においてこのような良好な結果が得られたことから、エタノール切削によっても特殊押し出し材と同様の薄くて緻密な酸化膜が形成されていると考えられる。実際2節にオージェ分光の結果を示したように、エタノール切削により酸化膜厚は自然酸化膜の数分の一に低減されている。無論、酸化膜厚だけで真空特性のすべてが説明される訳ではない。アルミ表面酸化膜のより微視的構造の解明がアルミ真空技術の今後の更なる発展のために望まれるところである。

5. 結 論

高エネルギー粒子加速器用として開発されたアルミ真空システムを用いてMBE装置を試作した。エタノール切削と呼ぶ切削法により容器内部を切削したところ、100°C45時間のベークングで 1×10^{-13} torr l/s cm²以下のガス放出率を有する表面が得られた。容器を50 l/sのターボ分子ポンプと液体窒素シュラウンド付きのチタン

サブリーメーションポンプで排気したところ、ベークなしで排気開始後23時間、ベークを行って排気開始後6時間でそれぞれ 10^{-10} torr 台まで排気された。これらのすぐれた直空性能、軽量性、そして総合コストの低さから、アルミ真空システムはMBEの工業化に大きな役割を果たすと思われる。

最後にアルミ真空技術に関し細かく御指導いただいた高エネルギー物理学研究所教授石丸肇氏に深く感謝いたします。株式会社白銅の高橋克実氏には材料その他さまざまな面でお世話になりました。またアルミ合金超高真空装置の開発に心から賛同して下さった東北大学電気通信研究所工場長小野昭一教授、佐藤喜一主任技官、アルミニウムの溶接に関して多くの困難を克服して下さった渡辺博志技官を始め附属工場の皆さんにお礼を申し上げます。

文 献

- 1) J. C. Bean: Internatinal Electron Devices Meeting. Dec. 1981, IEDM81.
- 2) H. J. Mathieu, M. Datta and D. Landolt: J. Vac. Sci. Technol. **A3** (1985) 331.
- 3) 水野 元, 堀越源一: KEK Report 84-11.14 (1984).