強力軟 X 線源の開発—AlN/Cu ターゲット

松谷 貴臣*¹・木内 正人*¹・白水 清孝*²
 吉岡 明浩*²・志水 隆一*²・高橋 貞幸*³

(受理2004年7月9日, 掲載決定2004年10月2日)

Development of High Power Soft X-ray Source—AlN/Cu Target

Takaomi MATSUTANI*¹, Masato KIUCHI*¹, Kiyotaka SHIROUZU*²,
 Ryuichi SHIMIZU*² and Sadayuki TAKAHASHI*³

*¹Collaborative Research Team of Surface Modification Technology, National Institute of
 Advanced Industrial Science and Technology, 1-8-31 Midorigaoka, Ikeda, 563-8577, Osaka

*²Department of Information Science, Faculty of Information Science and Technology,
 Osaka Institute of Technology, 1-79-1 Kitayama, Hirakata, 573-0196, Osaka

*³RIGAKU Corporation, 3-9-12 Matsubara-cho, Haijima, 196-8666, Tokyo

(Received July 9, 2004, Accepted October 2, 2004)

An AlN target for Al-K α x-ray source with high power and long service life has been developed by means of N₂⁺ ions assisted Al vapor deposition method. Ambient temperature formations of AlN on a Cu cold-anode were carried out at Al deposition rate varied from 2.0 nm/s to 0.15 nm/s with fixed low-energy N₂⁺ ion of 1 keV. The AlN films were characterized by an x-ray diffraction, an x-ray fluorescence and a Knoop-hardness measurement. The AlN deposited at Al deposition rate of 0.5 nm has N/Al ratio of 0.45, Knoop-hardness of $\sim$ 1500 and low electric resistance of $\sim$ 0.2 Ω . Comparison of durability test with the AlN target and a conventional Al target was performed by bombarding the targets with 40 keV electrons. It was found that a maximum electron input power of the test increased five times higher than that of Al/Cu target in conventional using model.

1. はじめに

Al-K α 線 ($h\nu = 1486.8$ eV) は, 物質に対する相互作用が強く吸収が高いことから, 光電子分光法や光電子回折の光源として使われている¹⁾. Al ターゲットを用いた場合には電子衝撃等であっても, 放射光に匹敵する強度が得られるようになってきている²⁾. しかしながら, 高強度の光を得るには投入する電子の入射パワーを増加する必要があるため, Al ターゲットは沸点以上の温度上

昇が生じる場合がある. 冷却効率を上げるために, 熱伝導が良く, 水に対する腐食に強い Cu 基板が用いられる. 一般には, 円筒状の銅表面に Al をコーティングし, 同じ Al 部分に電子が長時間照射されぬよう高速回転させながら内部を水冷する方式が用いられている. しかしながら, 熱サイクル疲労による表面あれやひび割れ等を生じるため, 短時間で光が減衰する.

本研究では, 高寿命, 高強度の電子衝撃型 Al-K α 線ターゲット材として, 窒化アルミニウム (AlN) 薄膜に着目した. AlN は機械的強度が高く, 熱伝導率の大きい材料として知られており ($\kappa_{\text{Al}} = 237$ W/m $\cdot$ K, $\kappa_{\text{AlN}} = 200$ W/m $\cdot$ K) 半導体材料としてだけでなくヒートシンク等さまざまな用途に研究, 実用化が進められている³⁻⁶⁾. また組成によっては金属的な振舞いを見せる.

*¹ 産業技術総合研究所表面機能化技術連携研究体 (〒563-8577 大阪府池田市緑丘 1-8-31)

*² 大阪工業大学情報科学部情報科学科 (〒573-0196 大阪府枚方市北山 1-79-1)

*³ 株式会社リガク (〒196-8666 東京都稲城市松原町 3-9-12)

ここでは、イオンビームアシスト蒸着法に着目し、電気伝導性を有するAlN薄膜の作製を試みた。本手法は、膜中の窒素含有量を比較的容易に制御でき、また密着性の高い薄膜形成が可能である。また、電子衝撃による負荷試験を行い従来のAlターゲットと比較した。

2. 実験方法

Fig. 1に本実験に用いた実験装置の外観写真(a)とその概略図(b)を示す。N₂⁺イオンの生成には電子サイクロトロン共鳴(ECR: $\lambda = 2.45$ GHz, $P = 1.5$ kW) プラズマイオン源を用いた。電子ビーム加熱によるAl蒸着と同時に加速電圧1 kV、イオン電流密度150 $\mu\text{A}/\text{cm}^2$ のN₂⁺イオンをCu基板上に供給した。Cu基板には20×20×5 mmの平板および銅製の回転対陰極を用いた。基板温度は雰囲気気温度である。プロセス圧力は 2.7×10^{-2} Paであった。加速電圧およびイオン電流密度を固定し、

Alの蒸着速度を2.0 nm/sから0.15 nm/sの範囲で変化させ薄膜作製を行った。アルミの蒸着速度はイオンビームがあたらないように設置した膜厚計により測定した。膜厚は0.5~7.0 μm の範囲で作製した。作製した薄膜はX線回折(XRD, Cu-K α 40 kV, 40 mA)により結晶構造評価を、蛍光X線(Rh 30 kV, 120 mA)により成分分析を行った。薄膜の強度測定にはスラブ硬度計を用いた。膜厚の測定には表面段差計を用いた。AlN-Cu基板間の電気抵抗を二端子法により測定した。従来のAlターゲットと比較するために銅製の回転対陰極上に膜厚20 μm のAl薄膜と膜厚1.5 μm のAlN薄膜を作製した。回転対陰極上への成膜は40×40 mmのマスキを介して行った。作製した回転対陰極を6000 rpmで水冷しながら回転させ0.2~3.4 kWの範囲で電子(加速電圧40 kV, 入射角度90 deg., 照射面積0.3×3 mm固定)を照射し、その後の表面形状を光学顕微鏡を用いて観察した。

3. 結果および考察

Fig. 2にAlの蒸着速度を2.0 nm/sから0.15 nm/sの範囲で変化させ堆積した薄膜のXRDパターンを示す。2.0 nm/s以上の蒸着速度では、Alが支配的な薄膜が作製されているのに対し、1.0 nm/sでは、Al(111)ピークの低角度側にショルダーを示した。このショルダーはAlN(002)の回折ピークに対応しており、AlとAlNの混晶膜が作製されていると考えられる。また0.5 nm/sで堆積した薄膜からは強いAlN(002)からの回折ピークを示した。さらに、0.15 nm/sではAlN(100)及びAlN(101)からの回折ピークを示している。Alの供給量に対してN₂⁺イオン照射の割合が増えるにつれ、窒化が進み、結晶成長の配向が変化することがわかる。

Fig. 3には各蒸着速度に対する膜中のN/Al(■)と実際に基板上に堆積した膜厚と供給したAlの膜厚の比(●)をプロットしたものである。1.5 nm/s以下で堆積した薄膜において窒素の混入が確認された。Alの蒸着速度を減少させるに従い、実際に作製される膜厚も減少した。これは供給したAlとN₂⁺イオンの基板表面における相互作用が強くなり、スパッタリングされてしまうためと考えられる。

Table 1には、各蒸着速度で堆積した試料群のスラブ硬度と電気抵抗値を測定したものをまとめた。窒素含有率の増加で硬度は高くなったが半導体的性質が現れるため、電気抵抗値は増加した。

比較的電気抵抗が低く、硬度の高いAlN薄膜が得られた条件(蒸着速度0.5 nm/s)に着目し、実際に電子線を照射し負荷試験を行った。Fig. 4(a)に電子線の投入電力1.8 kW, 1時間照射後のAl膜(膜厚20 μm)の光学

Fig. 1 Experimental setup of N₂⁺ ion beam assisted Al vapor deposition with ECR plasma source; (a) appearance photograph and (b) its schematic view.

Fig. 2 X-ray diffraction patterns of films prepared by 1 keV N_2^+ ions of $150 \mu\text{m}/\text{cm}^2$ with Al deposition rate from 2.0 to 0.15 nm/s.

Fig. 3 Al deposition rate dependence of N/Al ratio and ratio of thickness of deposited film/thickness of provided Al.

顕微鏡写真を示す。(b)はAl膜における電子照射部の拡大写真である。電子線照射によって熔融し冷却後再び凝固した様子が伺える。Alの損傷閾値は0.6 kW 以下で

Fig. 4 Photographs of Al and AlN film surface after durability test with electron impact of 40 keV. (a) Al surface was irradiated by electron input power of 1.8 kW for 1 hour and (b) its enlarged view. (c) AlN film surface prepared by 1 keV N_2^+ ions of $150 \mu\text{m}/\text{cm}^2$ with Al deposition rate of 0.5 nm/s were irradiated by electron input power of 3.4 kW for 1 hour.

あった。(c)は電子線の投入電力3.4 kW, 1時間照射後のAlN薄膜(蒸着速度0.5 nm/s, 膜厚1.5 μm)の表面写真である。縦方向に入っている筋は元々Cuの加工時に生じた旋盤の引き目である。Al表面に比べ形状の変化は見られなかった。負荷試験前後で1.5 kV, 83 μAの電子衝撃によって発生したAl-K α 線のX線強度を比較した

Table 1 Al deposition rate dependence of Knoop hardness electric resistance

Al deposition rate (nm/s)	Resistance (Ω)	Knoop hardness (Hv)
2.0	<0.01	590
1.0	<0.01	640
0.5	0.2	1500
0.15	100	1600

場合、Al 薄膜から発生する強度は20%減少したが AlN 薄膜では X 線強度に変化は見られなかった。Al 薄膜から発生する X 線が減衰した理由は主に Al の表面形状が荒れたために、X 線の再吸収が起こったためである。負荷試験前の Al 薄膜と作製した AlN 薄膜の X 線強度比は 1 : 0.8 であった。この差は、薄膜中に窒素が混入しているため Al 原子の密度が減少することにより起因するものであるが、電子の入射パワーを増加することにより解決できる⁷⁾。280 時間以上連続的に電子照射を行った後でも表面形状および X 線強度に全く変化はなかった。耐久試験は現在においても進行中である。

4. ま と め

高強度、長寿命の電子衝撃型 Al-K α 線源の開発とし

て、AlN/Cu ターゲットに着目し、イオンビームアシスト蒸着法により作製した。加速電圧 1 kV、イオン電流密度 $150 \mu\text{A}/\text{cm}^2$ の N_2^+ イオンと Al の蒸着速度 0.5 nm/s により、電気伝導性を有する c 軸配向した AlN 薄膜を得ることができた。電子線照射による負荷試験を行った結果、従来の Al ターゲットに比べ 5 倍以上の損傷閾値を得ることができた。

〔文 献〕

- 1) 二瓶好正, 尾張真則, 石井秀司, 大森真二, 白木将: 応用物理, **71** (2002) 401.
- 2) H. Ishii, S. Shiraki, S. Omori, M. Owari, M. Doi, S. Kojima, E. Yamada, S. Takahashi, K. Tsukamoto, T. Koshikawa and Y. Nihei: in "Microbeam Analysis 2000" ed. by D. B. Williams and R. Shimizu: Institute of Physics Conference Series Number, **165** (2000) 139.
- 3) John Emsley: "THE ELEMENTS" (Oxford University Press, New York, 1994) 2nd ed. p. 14.
- 4) S. N. Mohammad and H. Morkoc: Progress in Quantum Electronics, **20** (1996) 361.
- 5) M. van Schilfgaarde, A. Sher and A.-B. Chen: Journal of Crystal Growth, **178** (1997) 8.
- 6) P. K. Kuo, G. W. Auner and Z. L. Wu: Thin Solid Films, **253** (1994) 223.
- 7) 白水清孝, 吉岡明浩, 志水隆一, 高橋貞幸, 木内正人, 松谷貴臣: 第64回秋季応用物理学会学術講演会予稿集, No. 2 (2003) 616.