レーザーレター

レーザーアブレーション粒子の速度選択成膜

杉原 忠*・久芳 完治*

(1995年3月6日 受理)

Deposition by Velocity Selection of Laser Ablated Particles

Tadashi SUGIHARA* and Kanji KUBA*

(Received March 6, 1995)

An apparatus with a rotating mechanical chopper for thin film production has been developed. It is demonstrated that the energy of ablated particles is well selected by this method. Further, this method is applicable to Au thin film deposition and is recognized to be useful to improve thin film quality because the number of droplets in the film are drastically decreased.

Key Words: Laser ablation, Thin film, Velocity, Particle

1. はじめに

レーザーアブレーションによる薄膜形成技術は、従来より各種薄膜の形成に利用されてきた。特にエキシマレーザーによる薄膜作製は、高い組成制御性や、作製された膜特性が優れているなどの特徴を有しているため、近年、高温超伝導薄膜などの機能性酸化物薄膜などにおいて、盛んに研究されている。

薄膜形成時における付着粒子の持つ運動エネルギーは、作製される薄膜の膜密度や内部応力など、膜の諸特性を決める上で重要な因子と考えられている。エキシマレーザーアブレーションでは、原子・イオン・励起種等が形成され、成膜には幅広いエネルギーの粒子が利用される。成膜に利用される粒子の持つ運動エネルギーをコントロールする事は、膜特性の制御に有効な

手法であると考えられる。またエキシマレーザーによるアブレーションでは、パルス状に成膜される粒子が発生する。今回この特徴を利用し、成膜粒子の持つ付着速度の範囲を変えることが可能な装置を開発したので、本方式の原理及び特性について報告する。

2. 原理及び実験方法

Fig.1に本実験で用いた装置の概念図を示す。ターゲット上にスリットを持つ円盤(メカニカルチョッパー)を置き、このメカニカルチョッパーを高速で回転させ、スリットにより飛行してきた粒子をカットすることにより、アブレーション粒子のエネルギーの選択を行うことを基本原理としている。このときチョッパーの回転とレーザーとを同期させる必要がある。同期の方法としてはターゲットと180°対向する位置に

*三菱マテリアル(株)中央研究所(〒330 大宮市北袋町1-297)

* Central Research Institute of Mitsubishi Materials Corporation (1-297 Kitabukuro-cho, Omiya, Saitama 330)

Fig. 1 Schematic diagram of the apparatus.

フォトカプラを置きスリットの位置検出を行った。ターゲットは2~10 rpmで回転可能であり、上下方向に移動させることにより、チョッパーとの距離を20~80 mm(基板との距離で30~90 mm)の範囲で可変とした。

レーザーアブレーションにより形成される粒子は $5 \times 10^6 \sim 2 \times 10^4$ cm/sec¹⁾と幅広い運動速度分布を持つことが報告されている。高速で飛来してくる粒子をカットするためにメカニカルチョッパーは、真空中で高速に回転させる必要がある。メカニカルチョッパーはターボ分子ポンプの駆動部を利用することにより、4800~20000 rpmの範囲で 10^{-7} Torr台の真空度とすることができた。本実験で用いたメカニカルチョッパーは、 ϕ 400 mmのAl円盤に幅1 mmのスリットが4つある構造となっている。このためフォトダイオードからの信号は、400~1300 Hzとレーザーの最高繰り返し可能周波数に比べ高いため、パルスカウント回路を設けることにより同期可能とした。

アブレーション粒子の運動エネルギーの選択範囲は、フォトカプラからの信号を基準としてレーザーを照射するディレイ時間をコントロールすることにより行った。

メカニカルチョッパー上のスリットを通過したアブレーション粒子の持つ速度の測定は、四重極子質量分析計をチョッパー上におきターゲットから分析計までの飛行時間(Flight Time)を計測することにより行い、飛行粒子の持つ運動エネルギーを求めた。

実験は、KrFエキシマレーザー($\lambda = 248$ nm 14 nsec)をAu及びPtターゲットに照射して行った。スリットを通過する粒子の持つ速度範囲は、レーザー照射遅延時間、メカニカルチョッパーの回転数、ターゲット-チョッパー間距離によって変わるためこれら因子による選択特性変化の計測を行った。その後成膜を行い速度範囲選択の効果の確認をした。

3. 結果及び考察

Fig. 2にレーザーアブレーションにより形成されたAuイオンの速度分布を示す。アブレーションされた粒子の速度は 10^5 cm/sec台であり、これらの粒子が持つ運動エネルギーは数eV~数十eVと比較的高いエネルギーを持っている。

Fig. 3にレーザー照射の遅延(ディレイ)時間の設定を変えたときに、メカニカルチョッパーのスリットを通過する粒子の持つエネルギー範囲を測定した結果を示す。

ここで言うディレイ時間とは、フォトカプラによりターゲット直上にスリットがあることを検出後、次のスリットにアブレーション粒子を

Fig. 2 Velocity distribution of Au ions formed by KrF laser irradiation.

(a)

(b)

Fig. 3 Experimental energy region of the particle which is passed through a slit as a function of delay time for various mechanical-chopper revolution speeds. (a) 18000 rpm; (b) 6000 rpm.

通過させるためにとるレーザー照射の遅延時間のことである。ディレイ時間が小さい場合にはレーザー照射からスリット通過まで時間があるため高速粒子はスリットの通過前にチョッパーに到達しスリットを通り抜けることができない。その結果低速粒子を選択的にチョッパーを通過させることができる。逆にディレイ時間を大きくした場合、レーザー照射からスリット通過までの時間が短いため高速粒子のみ選択的にチョッパーを通過させることができる。

図中に見られるように、本方式では低エネルギー

粒子を選択しようとした場合その選択範囲は狭いが、高エネルギー粒子を選択した場合は選択範囲は広くなるといった選択特性を持っている。これは、スリットの開放時間一定で、タイミングのみ変化させているためであり、高速粒子ほど時間的広がりが小さいことに起因している。

Fig. 3(a), (b)にチョッパーの回転数を変えた場合の検出される粒子のエネルギー範囲を示す。回転数を早くするほど選択される粒子のエネルギー範囲は小さくなりエネルギー選択性が良くなることがわかる。これはチョッパーの回転が遅い場合にはスリットの解放時間が長くなるためである。

また、スリットによる選択特性に影響を与えるもう1つの因子として、ターゲット-チョッパー間距離がある。本装置では、この因子の選択特性に及ぼす効果は基本的に、回転数による効果と同じである。ターゲットまでの距離が遠くなるほど、飛行粒子がチョッパーに到達するまでの時間を要するため、粒子の時間分布が広がるため、選択特性は向上する。

この様に、レーザー照射遅延時間、メカニカルチョッパーの回転数、ターゲット-チョッパー間距離を変えることにより、高速あるいは低速粒子のみ、及びその両方をカットすることが可能である。

レーザーアブレーションによる薄膜形成は数多くの利点を持つが、問題点の1つとして数百Å～ミクロンオーダーのDropletの発生による表面モルフォロジーの低下が挙げられる。これはターゲット表面における不均一性の形成や、過飽和粒子の表面における凝集によるものと考えられている。

これらDropletの持つ速度は $10^4 \text{ cm/sec}^{1-3}$)台とされている。Dropletは、膜のモルフォロジーを低下させるだけでなく、膜特性自体に影響を与えるためその抑制方法が各種提案されている^{4,5)}。本方式は基本的に速度選択式でありアブレーション粒子の中心帯域である 10^5 cm/sec オーダーの粒子をスリットに通過させようとし

た場合、それより低速の粒子は基本的にカットされ基板に到達することはできない。そのため通常のレーザーアブレーション法で作製したAu薄膜には 10^5 個/cm²程度のDropletが存在するのに対し、本方式で作製した膜においては、Dropletの発生はほとんど見られず、Droplet抑制にも効果があることが確認された。

4. まとめ

メカニカルチョッパーを用いた速度選択方式により、レーザーアブレーションされた粒子の成膜粒子の速度範囲選択が可能であることを確認した。また本方式がDroplet発生抑制にも効果があることが確認された。今後、成膜粒子の持つ運動エネルギー範囲を変えた場合の、膜特性に与える影響について明らかにしていく予定である。

謝辞

本研究は、通商産業省工業技術院の産業科学

技術研究開発制度に基づき実施されている「先進機能創出加工技術の研究開発」の一環として、新エネルギー・産業技術総合開発機構から先進機能創出加工技術組合への委託事業によりまとめたものである。

参考文献

- 1) O. Eryu, K. Murakami, K. Masuda, K. Shihoyama and T. Mochizuki: Jpn. J. Appl. Phys. 31 (1992) L86.
- 2) H. Dupendant, J. P. Gavigan, D. Givord, A. Lienard, J. P. Rebouillat and Y. Souche: Appl. Surf. Sci. 43 (1989) 369.
- 3) D. Lubben, S. A. Barnett, K. Suzuki, S. Gorbalkin and J. E. Greene: J. Vac. Sci. Technol. B3 (1985) 4, 968.
- 4) 小林正樹, 辻原清人, 英貢, 古野志健男, 井口哲: レーザー学会第13回年次大会予稿集, (1993年)p. 157.
- 5) T. Venkatesan, X. D. Wu, R. Muenchausen and A. Pique: MRS Bulletin, 17 (1992) 2, 54.