

## 科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成25年5月1日現在

機関番号：12101

研究種目：基盤研究（C）

研究期間：2010～2012

課題番号：22540501

研究課題名（和文）大電力パルススパッタ放電の特性解明と成膜用金属イオン源への展開

研究課題名（英文）Research on the high-power pulsed sputtering discharge and its application to ion sources for thin film fabrication.

## 研究代表者

池畑 隆 (IKEHATA takashi)

茨城大学・理工学研究科・教授

研究者番号：00159641

研究成果の概要（和文）：大電力パルスマグネトロンスパッタ（HPPMS）の放電特性解明を主目的に電圧電流密度特性や発光スペクトルを詳しく調べた結果、HPPMSは異常グローモードで動作しており、放電領域が陰極全面に広がり、電子閉じ込めが悪化していることで電圧が顕著に上昇していることがわかった。また、新規な高密度金属イオン源として、プラズマドリフトを用いて磁場を横切ってイオンを引き出す不均一ペニングスパッタ装置を考案した。

研究成果の概要（英文）：In order to explore discharge properties of high-power pulsed magnetron sputtering (HPPMS), the voltage-current density characteristics and emission spectra were measured. It was found that HPPMS operated in the abnormal glow mode and the discharge area was extended over the whole radius of the cathode. The discharge voltage was found to rise while the primary electron confinement degraded by extension of the discharge area. Next, we proposed an inhomogeneous Penning sputtering device as a novel high-density metal ion source. It uses plasma drift as the mechanism of cross-field ion extraction.

## 交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
2010年度	2,200,000	660,000	2,860,000
2011年度	700,000	210,000	910,000
2012年度	500,000	150,000	650,000
年度			
年度			
総計	3,400,000	1,020,000	4,420,000

研究分野：数物系科学

科研費の分科・細目：プラズマ科学・プラズマ科学

キーワード：放電、金属プラズマ源

## 1. 研究開始当初の背景

マグネトロンスパッタは、固体表面に薄膜を形成する標準的PVD手法として多用されている。しかし、プラズマの電離度が数%以下と低く、スパッタガスであるアルゴンを膜中に取り込むため、膜の緻密性、密着性が低い問題があった。最近、大電力(>1kW/cm<sup>2</sup>)のパ

ルススパッタ放電によってアルゴンガスを含まない電離度90%以上の金属プラズマを発生できることが欧州の研究者らによって報告され、高純度で緻密性、密着性の高いコーティングへの応用展開が試みられている。大電力パルススパッタは従来のマグネトロンスパッタにない特性を有し、高機能成膜への

応用などを期待できる。しかし、国内では少数が研究を開始したのみである。放電基礎過程から金属イオン源応用までの一貫した研究を進展させることが必要であった。

また大電力パルススパッタは、気体放電の一形態である異常グロー放電を利用していると考えられる。異常グロー放電は、定電圧を特徴とする正規グローと低電圧・大電流のアーク放電の中間に現れ、正の電流電圧特性を特徴とするが、一般に不安定で直ちにアーク放電に遷移することから、これまで研究の対象になりにくかった。大電力パルススパッタ放電では、冷却期間を設けることでアーク転移を防ぎ、異常グロー放電を持続できるものと考えられる。本研究は、これまで不足していた異常グロー放電の特性、持続条件に関する知見を強化することに寄与し、気体放電の学術的観点からも有意義と考える。

## 2. 研究の目的

固体表面に金属や化合物の薄膜を形成する標準的手法にマグネトロンスパッタ (MS) がある。しかし、従来の直流スパッタ (DCMS) や高周波スパッタ (RFMS) では、発生粒子がほとんど中性原子であること、およびスパッタガスのアルゴンを膜中に取り込むことにより膜質が低下するなどの問題があった。本研究は、大電力パルススパッタ (HPPS) 放電によって電離度の高い金属プラズマを発生し、これを成膜用金属イオン源に応用することを目的とする。また、放電特性を詳細に調べ、気体放電理論から検討を加えることによって、大電力パルススパッタ放電の放電持続条件、自己スパッタ条件など学術的課題を解決する。

## 3. 研究の方法

平成22年度は、大電力パルススパッタ放電の電気特性、スパッタ収率、金属蒸気が放電特性に及ぼす効果などを調査し、大電力パルススパッタ放電の形態・特性を明確にする。

平成23年度以降は、金属イオン源を試作し、金属及び窒化物の薄膜を形成し、その特性を評価する。膜の微視的構造、機械特性等から、本金属イオン源の成膜ツールとしての有用性を明確にする。本研究の実施体制は、研究代表者と研究協力者である大学院生延べ3名の計4名で行われた。

## 4. 研究成果

### (1) 大電力パルスマグネトロンスパッタ (HPPMS) の放電特性解明

#### ① 主な成果

電流電圧特性、発光スペクトル径方向分布の放電電流依存性から、HPPMS が異常グロー

モードで動作していることが明確になった。電流密度の増加とともに放電領域がリング領域からターゲット (陰極) 全面に広がったとき電圧の急激な上昇があり、異常グローに遷移する。このとき陰極中心部の発散磁場に乗って高エネルギー二次電子が陰極の遠方まで輸送され Ar スパッタガスをイオン化するため、プラズマの径方向分布もリング状でなく陰極に沿ってほぼ一様な分布となった。また CuI、ArI 発光スペクトルは、DCMS、HPPMS グローモード、HPPMS アークモードで極めて特徴的な径方向分布を示した。こうした HPPMS の詳細な挙動は今回初めて明らかにされたものである。

## ② 研究の概要

### 1) 電圧電流特性と放電形態

ターゲット電圧と電流密度の関係を HPPMS と DCMS とで比較してみた。結果を Fig. 1 に示す。陰極面積は  $5\text{ cm}^2$  である。駆動パルスは幅  $20\text{ }\mu\text{s}$ 、 $10\text{ Hz}$  である。DCMS では電圧は電流密度とともに  $260\text{ V}$  から  $440\text{ V}$  まで上昇する。

HPPMS では、電圧は  $0.018\text{ A/cm}^2$  での  $540\text{ V}$  から  $0.9\text{ A/cm}^2$  での  $730\text{ V}$  まで徐々に増加し、 $0.9\text{ A/cm}^2$  を超えると電圧は  $1500\text{ V}$  まで急激に上昇した。さらに、急激な電圧降下 ( $1500\text{ V}$  から  $60\text{ V}$  へ) が  $4\text{ A/cm}^2$  で起こった。これは、陰極面が加熱されて熱電子放出が顕著になり、グロー放電からアーク放電への遷移が起こったためである。アークモードでは、マグネトロンスパッタの放電電圧が低くなるので、陰極のスパッタリングは起こりにくくなる。

これらの結果は従来の低気圧放電の挙動と一致する。まず放電は、低電流密度領域 ( $0.002\text{--}0.9\text{ A/cm}^2$ ) で、定電圧 (本研究では  $260\text{--}730\text{ V}$ ) で特徴付けられる「正規グローモード」からスタートする。実際には電圧が徐々に増加しているが、これは陰極表面にマグネトロン磁場が印加されているためと考えられる。当初は電子閉じ込めが効くリング領域に放電が集中するため、電離効率が高く、したがって放電電圧は低くなる。電流密度の増加とともに放電領域が発散磁場領域まで広がるため、電子閉じ込めの悪化を補うように放電電圧が上昇する。さらに電流密度が増加して放電が陰極全面を覆うようになると、もはや放電領域を拡大して電流密度を上昇させることができないため、放電電圧を上げて電離率を上げようとする。放電電圧が電流密度に比例して急速に上昇し ( $0.9\text{--}3\text{ A/cm}^2$  に対し  $800\text{--}1500\text{ V}$ )、放電形態は「異常グローモード」に遷移する。そして電流密度が  $4\text{ A/cm}^2$  を超えると陰極加熱による熱電子の放出が起こり、電圧は急降下 ( $70\text{--}80\text{ V}$ ) し、放電形態は「アークモード」に遷移する。本研

究において、アークモードへの遷移が起こる電力密度は  $4 \text{ kW/cm}^2$  であった。また高フラックスのスパッタリングに適した電力密度は  $2-3 \text{ kW/cm}^2$  であった。もちろんこれらの電力値はパルスの幅や繰り返し周波数、陰極の冷却能力などに依存する。

Fig. 1 に示された3点、A、B、C はそれぞれ、DCMS における正規グロー放電、HPPMS における異常グロー放電、HPPMS におけるアーク放電の動作点を示す。これら A、B、C の動作点での放電写真を Fig. 2 に示す。動作点 A (Fig. 2(a)) では、リング状に強い放電が見られる。動作点 B (Fig. 2(b)) では、放電が陰極全面に広がっている。Fig. 2(a)、Fig. 2(b) において緑色の発光が強いのは、Cu のスパッタリングが強く起こっているため、Fig. 1 において動作点 A、B の放電電圧が高いことと矛盾しない。一方、動作点 C (Fig. 2(c)) では、放電光は陰極中心部で強く、しかも発光色は緑色からピンクに変わっている。C では Cu のスパッタリングがほとんどないことは明白である。異常の詳細については、後で議論する。

## 2) 発光スペクトル

Fig. 1 の動作点 A、B、C において、陰極近傍の発光スペクトルの径方向強度分布を測定した。ファイバ集光装置を用いて径方向分解能  $1 \text{ mm}$  を達成している。Fig. 3(a) に CuI  $521.82 \text{ nm}$ 、Fig. 3(b) に ArI  $811.53 \text{ nm}$  の分布を示す。DCMS-A では CuI 発光は半径  $6 \text{ mm}$ 、幅  $5 \text{ mm}$  のリング領域に局在し、HPPMS-B では発光が陰極全面に広がっている。アーク遷移後の HPPMS-C では CuI の発光はほとんど見られない。すなわち HPPMS-C ではスパッタリングがほとんど起こっていない。この結果は、Fig. 1 および Fig. 2 の結果と良く一致する。次に ArI の発光分布を見ると、DCMS では CuI と ArI の発光分布が一致し、リング状である。すなわち高エネルギー電子はリング状のミラー閉じ込め磁場領域のみに存在している。一方、HPPMS-B、HPPMS-C では、ArI 発光が中心付近で顕著に強くなっている。これはおそらく、HPPMS-B、HPPMS-C では放電が陰極全面に広がっており、陰極中心付近から放出された二次電子が、中心付近の発散磁場に沿ってより遠方まで輸送され、周囲の Ar ガスを励起するためと考えられる。

上記の他にプラズマ密度の空間分布を測定し、DCMS と HPPMS とで比較している。HPPMS のプラズマ密度は DCMS に比べて概ね2桁上昇した。

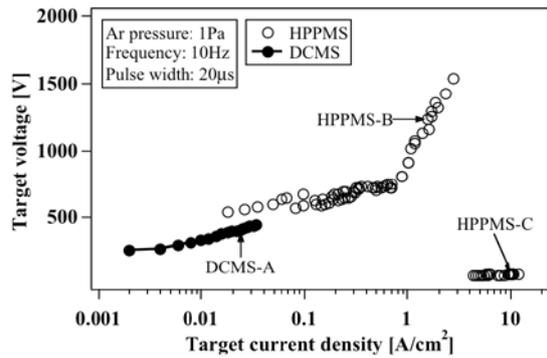


Fig. 1 マグネトロンスパッタ (DCMS、HPPMS) の電圧-電流密度特性

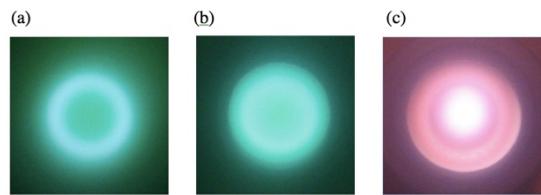


Fig. 2 動作点 (a) DCMS-A、(b) HPPMS-B、(c) HPPMS-C における放電発光写真

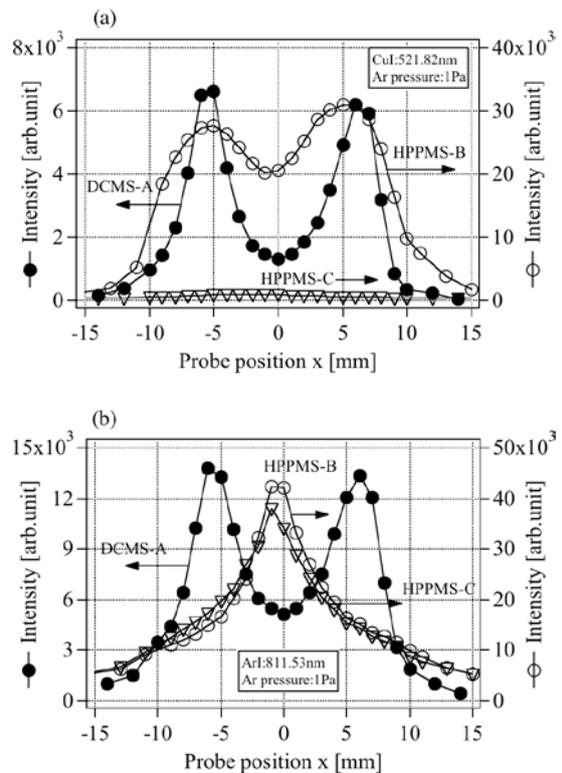


Fig. 3 動作点 DCMS-A、HPPMS-B、HPPMS-C における発光スペクトル強度の径方向分布。(a) CuI  $521.82 \text{ nm}$ 、(b) ArI  $811.53 \text{ nm}$

(2) 大電力パルス駆動ペニングスパッタ装置による高密度金属イオンの生成と引き出し

① 主な成果

ペニングスパッタ装置と大電力パルス電源を組み合わせた金属イオン源を試作し、放電特性、プラズマ密度の電流依存性、空間分布などを調査した。陽極配置、Arガス圧、駆動パルスの条件を最適化することにより、安定なパルスグロー放電を持続する条件を見出した。陰極ギャップの中心で $10^{12}\text{cm}^{-3}$ を超える密度が観測された。

ペニング配位では、磁場による電子閉じ込めが有効に働いて高いプラズマ密度を達成している。しかし一方では、この磁場がイオンの引き出しを難しくしている。そこで、磁場を横切ってイオンを引き出すため、敢えて磁場分布を不均一にし、トロイダルドリフトを利用することを考えた。こうしたアイデアはこれまで報告例がなく、オリジナルである。試作機を製作し、原理検証試験を試みた。安定な放電とプラズマ生成は確認されたが、残念ながら、有意なトロイダルドリフトの発生は認められなかった。磁場分布に改善すべき点が考えられるため、今後、装置を再設計して再チャレンジする予定である。これらの研究の詳細は、学会発表③の提出論文に記述されている。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計2件)

- ① A. Kantani, H. Sato, Y. Nonaka, N.Y. Sato, T. Ikehata, "Dual-plasma ion process for surface treatment of insulators" Surf. Coat. Technol., 206, 929-933 (2011) (doi:10.1016/j.surfcoat.2011.04.041) (査読有)
- ② T. Ikehata, R. Sasaki, T. Tanaka, K. Yukimura, "Positive-plasma-bias method for plasma-based ion implantation and deposition" Surf. Coat. Technol., 204, 2881-2891 (2010) (doi:10.1016/j.surfcoat.2010.03.004) (査読有)

[学会発表] (計15件)

- ① 池畑隆、安藤龍哉、山本拓哉、高木雄太、佐藤直幸、鶴殿治彦、「Si基板上Mgスパッタ膜のアルゴン雰囲気中アニール処理によるMg<sub>2</sub>Si膜の合成」第60回応用物理学会春季学術講演会、30a-G7-1、(2013)
- ② 山本拓哉、安藤龍哉、高木雄太、佐藤直

幸、鶴殿治彦、池畑隆、「Si基板上Mgスパッタ膜のアニール処理によるMg<sub>2</sub>Siの合成と微細構造解析」電気学会プラズマ研究会、PST-13-014、(2013)

- ③ 菊地貴允、佐藤直幸、東欣吾、池畑隆、「大電力パルス駆動ペニングスパッタ装置における高密度プラズマの生成に関する研究」電気学会プラズマ研究会、PST-13-025、(2013)
- ④ 安藤龍哉、山本拓哉、高木雄太、池畑隆、佐藤直幸、鶴殿治彦、「Si基板上Mgスパッタ膜のアニール処理によるMg<sub>2</sub>Siの合成」電気学会プラズマ・パルスパワー合同研究会、PST-12-094、PPT-12-117、(2012)
- ⑤ T. Ando, T. Yamamoto, Y. Takagi, N. Sato, H. Udono, T. Ikehata, "Mg<sub>2</sub>Si Thin Film Prepared by Annealing in Noble Gas Atmosphere" 8th International Student Conference at Ibaraki University (ISCIU8), No.20, Japan, (2012)
- ⑥ T. Kikuchi, N.Y. Sato, T. Ikehata, "A high-power pulsed sputtering device with modified penning geometry" 8th International Student Conference at Ibaraki University (ISCIU8), No.22, Japan, (2012)
- ⑦ T. Ikehata, M. Tomita, T. Mashiko, N.Y. Sato, "A novel plasma technology for surface modification of semiconducting and insulating materials" (Invited) Proc. 7th Asia-Pacific Symposium on Plasma Technologies (APSPT-7), Taiwan, (2012)
- ⑧ T. Ikehata, S. Nemoto, T. Ando, N.Y. Sato, "Discharge and plasma production characteristics of a disc magnetron operated in dc and pulsed sputtering modes", 11th Int. Workshop on Plasma-Based Ion Implantation and Deposition (PBII&D2011), China, (2011)
- ⑨ 池畑隆、「高密度・高電離度金属プラズマの発生に関する研究」(招待講演)、電気学会プラズマ研究会、PST-11-045、(2011)
- ⑩ 根本翔、安藤龍哉、深澤孝嘉、池畑隆、佐藤直幸、東欣吾、「大電力パルスマグネトロンスパッタによる高密度メタルプラズマの生成と空間分布」(優秀発表賞受賞) 電気学会プラズマ・パルスパワー合同研究会、東工大岡山、PST-10-128、(2010)
- ⑪ 根本翔、安藤龍哉、深澤孝嘉、池畑隆、佐藤直幸、「大電力パルススパッタを用いた高密度メタルプラズマの生成に関する

研究]第 18 回電気学会東京支部茨城支所  
研究発表会、PA30、(2010)

[図書] (計 0 件)

[産業財産権]

○出願状況 (計 0 件)

名称：  
発明者：  
権利者：  
種類：  
番号：  
出願年月日：  
国内外の別：

○取得状況 (計 0 件)

名称：  
発明者：  
権利者：  
種類：  
番号：  
取得年月日：  
国内外の別：

[その他] なし

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

池畑 隆 (IKEHATA TAKASHI)  
茨城大学・理工学研究科・教授  
研究者番号：00159641