

真空アークプラズマの磁気輸送と ドロップレット削減効果

豊橋技術科学大学 池田光邦, 泉喜久夫
宮野竜一, 日比美彦
滝川浩史, 榊原建樹

Magnetic Transportation of Vacuum Arc Plasma and Droplet Filtering

Mitsukuni IKEDA, Kikuo IZUMI
Ryuichi MIYANO, Yoshihiko HIBI
Hirofumi TAKIKAWA, Tateki SAKAKIBARA

Department of Electrical and Electronic Engineering,
Toyohashi University of Technology

Abstract

A straight-type magnetically filtered cathodic vacuum arc, which consisted of arc plasma generation room (AG room) and film preparation room (FP room), was fabricated and the ion currents at various positions in FP room were measured. Then, we proposed two methods of deposition using this apparatus; straight magnetically transported cathodic arc deposition (SMT-CAD) and cusp magnetic configuration-diffused cathodic arc deposition (CMC-DCAD). The methods were tested by preparing TiN film. The results obtained were as follows. (1) The ion current extracted to FP room applying a straightforward magnetic field at AG room was five times as high as that applying a cusp magnetic field. (2) The deposition rate for CMC-DCAD was one tenth or less, compared with that for SMT-CAD. (3) The practical deposition area for CMC-DCAD could be about ten times as big as that for SMT-CAD. (4) A number of macrodroplets for SMT-CAD and CMC-DCAD was much less than that for conventional steered method and shielded method.

Keywords: Vacuum arc plasma, Magnetic transportation, Ion current, Droplets, TiN film

1. はじめに

真空アーク蒸着法（あるいは、アークイオンプレーティング法）は、陰極点から放出される高エネルギーのイオンを利用して薄膜を生成する表面改質技術の一つで、成膜速度が高い、基板との密着性がよい膜が得られる、装置の大型化が容易、などの利点がある。しかしながら、真空アークの陰極点からは、イオンと同時にドロップレットと呼ばれる陰極材料の微粒子が放出され、これが生成膜に付着し、膜質を低下させることが問題となっている¹⁾⁻³⁾。

真空アーク蒸着法におけるドロップレット問題の解決法として、これまでに様々な手法が考案されている。分散放電型⁴⁾、ステアド型⁵⁾、シールド型⁶⁾⁻⁹⁾、磁気フィルタ型¹⁰⁾⁻¹⁴⁾などである。分散放電型は加熱陰極を用いる手法であり、ドロップレット自体が発生しない。しかしながら、

この手法は利用できる陰極が制限されるため、報告例はわずかしかない⁴⁾。ステアド型は陰極表面に磁界を印加して陰極点を強制駆動することで、ドロップレットの発生を抑制する手法である。最も広く用いられている手法であるが、ドロップレットの発生を十分に抑制することはできない。シールド型は、陰極と基板との間に一枚の板（遮蔽板）を配置して、基板にドロップレットが付着するのを防ぐ手法である。ドロップレットの除去効率は比較的良いものの、成膜速度が低下するという問題がある。磁気フィルタ型は、プラズマをアーク発生室からプロセス室へ磁氣的に輸送する間に輸送部内壁にドロップレットを付着させる手法で、現在のところ最も効率的にドロップレットを除去できる手法である。

以上のような背景のもと、本論文では、ストレートタイプの磁気フィルタ型真空アークプラズマ装置を製作し、その基礎特性を明らかにする。更に、同装置を用いたカusp磁気配位拡散型真空アーク蒸着法を提案し、TiN膜成膜を通してその有効性を評価する。

2. 直線状磁気フィルタ型真空アーク蒸着装置

電磁コイルを直線状に配置した磁気フィルタ型真空アーク蒸着装置を Fig. 1 に示す。同装置は、アークプラズマ発生室と成膜プロセス室とを接続したものである。アーク発生室 (210 mm ϕ ×340 mm) には、Ti 陰極 (直径 64 mm) と円筒状 Cu 陽極 (160 mm ϕ ×190 mm) を配置した。プロセス室は SUS304 製の円筒型真空チャンバ (400 mm ϕ ×600 mm) とした。アーク発生室とプロセス室との間は 120 mm ϕ のダクトで接続した。アーク放電を安定して持続させるため、陰極背後に Nd 合金磁石を配置し、陰極方向を S 極とした。陰極表面における中心磁束密度は 2 mT であった。アーク発生室からプロセス室までイオンを輸送するために、陰極表面からの距離 $z = 42$ mm の位置にアーク安定化およびプラズマ送り出し用電磁コイル C_1 (内径 220 mm, 幅 50 mm) を配置した。また、プロセス室へプラズマを引出すための電磁コイル C_2 (内径 156 mm, 幅 50 mm) を $z = 302$ mm の位置に、基板へイオンを輸送するための電磁コイル C_3 (内径 180 mm, 幅 50 mm) を $z = 508$ mm の位置に配置した。プロセス室内でのイオンの量 (イオン電流) を計測するために、Fig. 1 中の P_1 ($z = 334$ mm) および P_2 ($z = 484$ mm) の位置に円板プローブ (130 mm ϕ , 背面絶縁) を、 P_3 ($z = 409$ mm) の位置に長方形板状プローブ (100 mm×130 mm, 背面絶縁) を適宜配置した。プローブには、-50 V のバイアス電圧を印加し、イオン飽和電流を計測した。なお、アーク電源には、溶接用電源 (ダイヘン社製, インバータアルゴ 300, 定格電流 300 A, 定格負荷電圧 35 V, 開放電圧 65 V) を使用した。

実験手順は以下の通りとした。チャンバ内を 0.005 Pa 以下にまで排気した後、 N_2 を流量 10 ml/min でチャンバ内に導入した。その後、自動制御バルブによって排気流量を調整し、圧力を 0.1 Pa に設定した後、Mo 製トリガ電極を用いた接触点弧法によってアークを点弧し

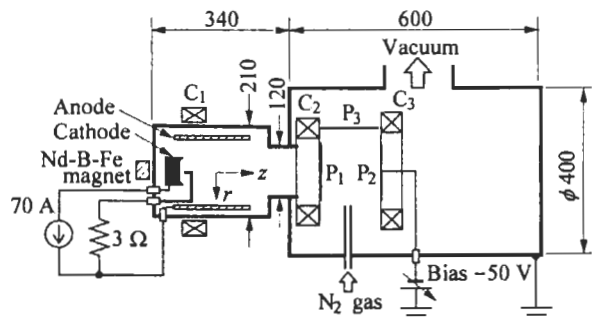


Fig. 1. Straight magnetically transported-cathodic arc deposition system and cusp magnetic configuration-diffused cathodic arc deposition system.

た。アーク電流は直流 70 A とした。まず、 C_1 、 C_2 、および C_3 の磁束密度を変化させて、イオン電流を計測した。次に、 P_2 および P_3 の位置において TiN 膜を生成した。生成膜の表面様相を光学顕微鏡で観測するとともに、膜厚を計測し、成膜速度を算定した。なお、以降、本論文では、磁束密度は電磁コイル中央における値で示し、磁界がアーク発生室からプロセス方向へ向かう方向 (z 方向, N 極) を正の磁束密度とする。

3. 実験結果および考察

3.1. アーク発生室からプロセス室へのプラズマ引き出し

最初に、 C_2 および C_3 の磁界を印加せず ($B_{C2}, B_{C3} = 0$ mT), C_1 の磁束密度 B_{C1} を変化させたところ、アークを安定に持続運転できる磁束密度は $-2 \sim 0$ mT の範囲であることがわかった。そこで、 $B_{C1} = -2$ mT, $B_{C3} = 0$ mT とし、 B_{C2} を変化させて P_1 におけるイオン電流を計測した。その結果を Fig. 2 に示す。 B_{C1} と B_{C2} とが逆方向の場合、イオン電流は約 200 mA であるのに対し、 B_{C1} と B_{C2} とが同方向の場合、約 1,000 mA と逆方向の 5 倍のイオン電流をアーク発生室から引き出せることがわかる。なお、

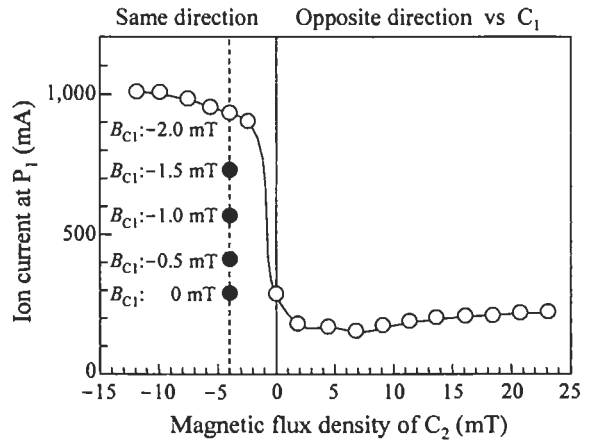


Fig. 2. Ion current at P_1 as a function of magnetic flux density of C_2 (cathode: Ti, gas: N_2 (10 ml/min), pressure: 0.1 Pa, arc current: 70 A, $B_{C1} = -2$ mT, $B_{C3} = 0$ mT).

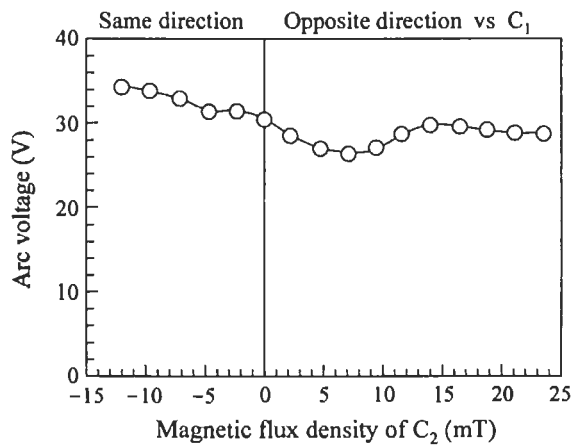


Fig. 3. Arc voltage as a function of magnetic flux density of C_2 (cathode: Ti, gas: N_2 (10 ml/min), pressure: 0.1 Pa, arc current: 70 A, $B_{C1} = -2$ mT, $B_{C3} = 0$ mT).

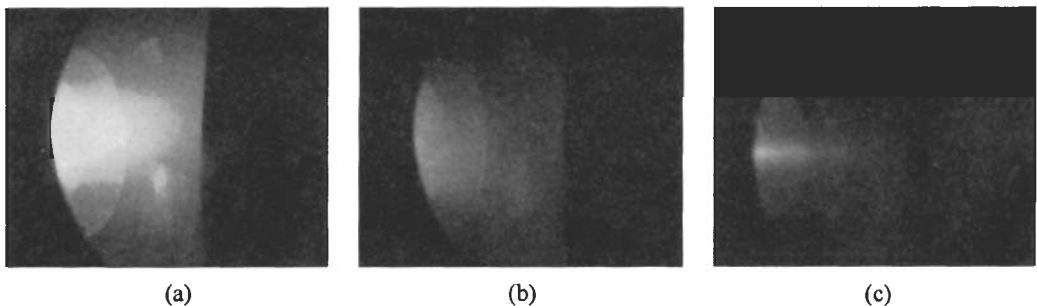


Fig. 4. Photographs of plasmas extracted from arc generation room to process room, applying (a) $B_{C2} = -2$ mT, (b) 0 mT, and (c) 12 mT ($B_{C1} = -2$ mT and $B_{C3} = 0$ mT).

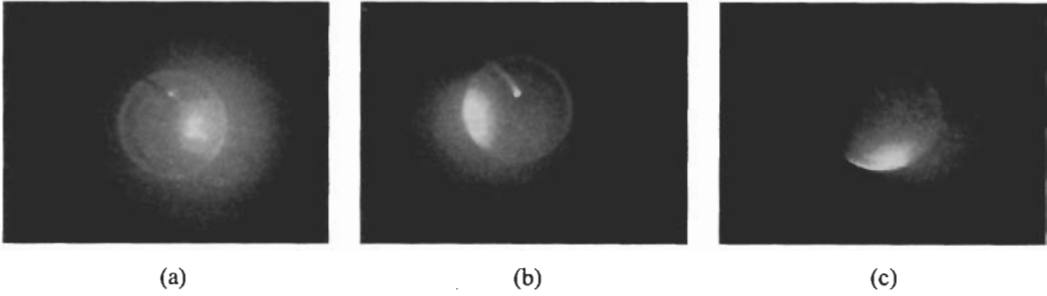


Fig. 5. Photographs of cathode spots, applying (a) $B_{C2} = -2$ mT, (b) 0 mT, and (c) 12 mT ($B_{C1} = -2$ mT and $B_{C3} = 0$ mT).

同図には、 B_{C2} を 4 mT に固定し、 B_{C1} を変化させたときの値もプロットしてある。 $|B_{C1}|$ を減少させると、引き出されるイオン電流が減少する。

イオン電流計測と同時に、アーク電圧を計測した。その結果を Fig. 3 に示す。逆方向磁界の場合、アーク電圧は 30 V 以下であるのに対し、同方向磁界の場合は 30 V 以上である。使用電源の定格電圧が 35 V であるため、同方向磁界の場合、アークが頻繁に自己消弧した。

また、アーク発生室出口におけるプラズマの様相をデジタルカメラで撮影した。 $B_{C1} = -2$ mT, $B_{C3} = 0$ mT とし、 B_{C2} を -2, 0, 12 mT と印加させた場合の様相を Fig. 4 に示す。プラズマの発光は -2 mT の場合が最も強く、0, 12 mT の順で弱くなることわかる。この結果はイオン電流の大きさと一致している。

更に、Fig. 4 と同じ条件で陰極点の様相を観察した。その結果を Fig. 5 に示す。陰極点の様相は、 B_{C2} にはあまり依存していなかった。

3.2. プロセス室へのプラズマ輸送

前節の結果をもとに、アーク電圧が低く、放電が安定して持続し、かつ、できるだけ大きなイオン電流が得られる条件、すなわち、 $B_{C1} = -1$ mT, $B_{C2} = -3$ mT とし、 B_{C3} を変化させて P_1 および P_2 の位置でイオン電流を計測した。その結果を Fig. 6 に示す。 B_{C3} が 5 mT 以上では磁束密度の増加とともに、イオン電流は緩やかに減少している。これは、 B_{C2} と B_{C3} とが逆方向磁界を形成した場合、 B_{C3} が大きくなると、 P_1 の位置の磁界分布に影響を及ぼし、その結果、イオンがプローブ面より外側に拡散するためであると考えてよい。従って、 B_{C3} を変化させてもアーク発生室からプロ

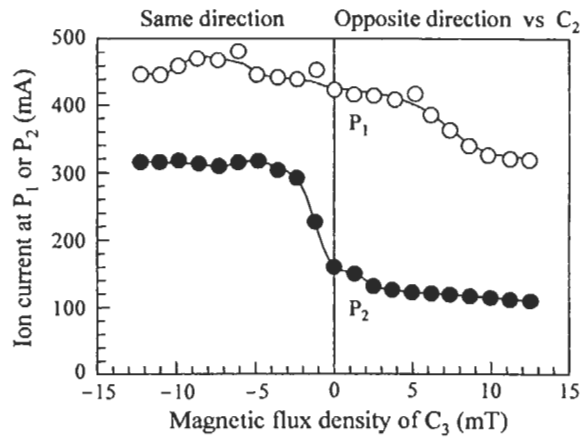


Fig. 6. Ion currents at P_1 and P_2 as a function of magnetic flux density of C_3 (cathode: Ti, gas: N_2 (10 ml/min), pressure: 0.1 Pa, arc current: 70 A, $B_{C1} = -1$ mT, $B_{C2} = -3$ mT).

セス室へ引き出されるイオン電流の総量には大きな影響はないと考えている。なお、アーク電圧は B_{C3} を変化させても 27 V 程度でほぼ一定であった。一方、 P_2 の位置でのイオン電流は、 B_{C2} と B_{C3} とが同方向磁界を形成する場合、約 320 mA であるのに対し、逆方向磁界を形成する場合、約 120 mA 程度に極端に減少する。この原因は、逆方向磁界の場合、プラズマが C_1 と C_2 との間で径方向 (r 方向) に拡散するためである。

次に、 B_{C2} と B_{C3} とを逆方向にし、 C_1 と C_2 との間で半径方向へ輸送されるイオンの量を把握するため、 P_3 の径方向距離 r をパラメータとし、 B_{C3} を変化させてイオン電流を計測した。その結果を Fig. 7 に示す。同図から、 r が大きくなる、すなわち中心から離れるに従い、イオン電流が小さくなっていくことがわかる。しかし、この値はプローブ位置と中心からの放射角との関係が考慮されていない。そこで、プラズマが同心円柱状に一樣であると仮定し、半径 r の円筒面に流入する全イオン電流の値を算定した。その結果を Fig. 8 に示す。全イオン電流は、 $r < 125$ mm では同方向磁界の場合の方が逆方向磁界の場合より大きい。しかしながら、中心から離れるにつれ、同方向磁界の場合の全イオン電流は急激に小さくなり、 $r = 150$ mm では逆方向磁界の場合の方がやや大きくなる場合も生じている。

B_{C2} と B_{C3} とが逆方向の場合、 P_3 が $r = 75$ mm (注、接続ダクト半径: 60 mm) の円筒面での全イオン電流 (Fig. 8, 約 260 mA) と P_2 の位置での値 (Fig. 6, 約 120 mA) とを加え合わせると、 P_1 での値 (Fig. 6, 約 400 mA) とほぼ等しくなる。このことは、アーク発生室からプロセス室へ引き出されたイオンが径方向に拡散していることを意味している。また、 P_2 でのイオン電流より円筒面でのイオン電流の方が大きいことは、中心軸から離れた側面での成膜が効果的であることを示している。一方、 B_{C2} と B_{C3} とが同方向の場合、 P_3 が $r = 75$ mm の円筒面での全イオン電流 (Fig. 8, 約 340 mA) と P_2 の位置での値 (Fig. 6, 約 310 mA) とを加え合わせると、 P_1 の位置のイオン電流値 (Fig. 6,

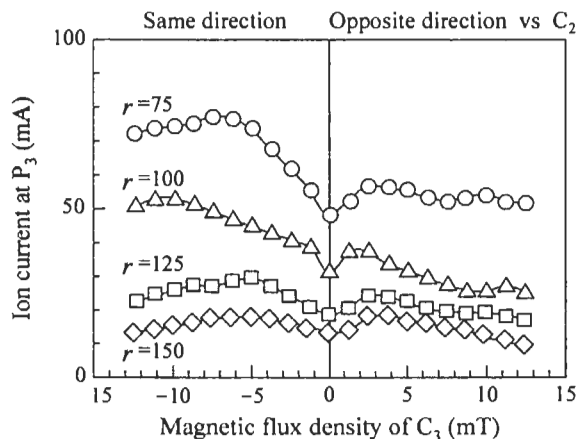


Fig. 7. Ion current at P_3 at various radial distances r , as a function of magnetic flux density induced by C_3 (cathode: Ti, gas: N_2 (10 ml/min), pressure: 0.1 Pa, arc current: 70 A, $B_{C1} = -1$ mT, $B_{C2} = -3$ mT).

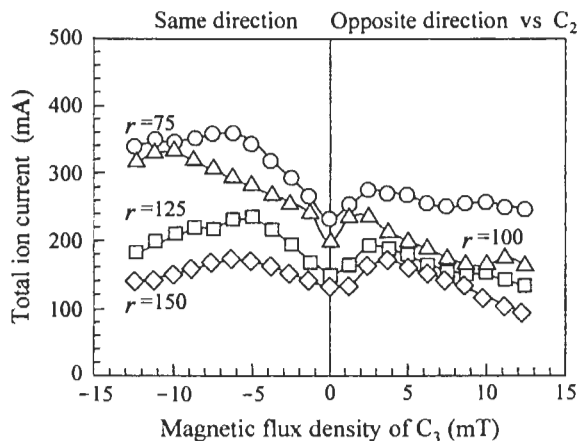


Fig. 8. Estimated total ion current at various cylindrical surfaces with radius r , as a function of magnetic flux density of C_3 (cathode: Ti, gas: N_2 (10 ml/min), pressure: 0.1 Pa, arc current: 70 A, $B_{C1} = -1$ mT, $B_{C2} = -3$ mT).

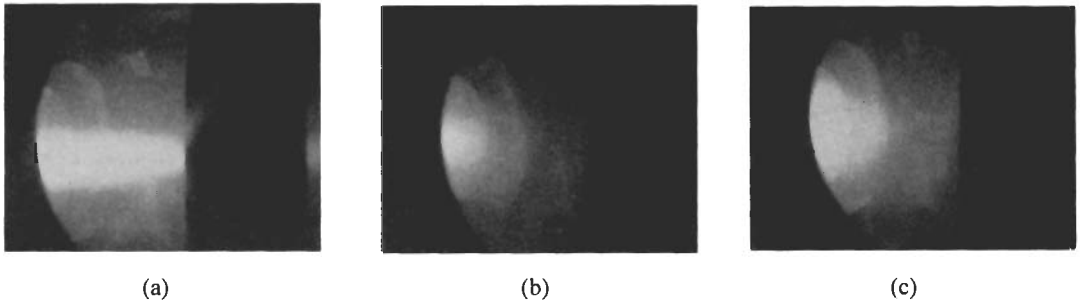


Fig. 9. Photographs of plasmas extracted from arc generation room to process room, applying (a) $B_{C3} = -12$ mT, (b) 0 mT, and (c) 12 mT ($B_{C1} = -1$ mT and $B_{C2} = -3$ mT).

約 460 mA) より大きくなる。これは、 C_2 と C_3 の磁界を同方向にしても、その間の空間で理想的な平行磁界が形成できないため、プラズマが絞り込まれず、一旦こぶのように広がることを意味している。つまり、 P_3 の位置で計測されるイオンの一部は、 P_3 にプローブがなければ本来 P_2 まで到達するイオンの一部であり、その結果、 P_2 と P_3 におけるイオン電流の和が P_1 におけるイオン電流より見掛け上大きくなる。 $B_{C1} = -1$ mT, $B_{C2} = -3$ mT とし、 B_{C3} を変化させた場合のアーク発生室出口におけるプラズマの様相を **Fig. 9** に示す。 B_{C2} と B_{C3} とが同方向磁界の場合 (**Fig. 9(a)**)、プラズマの発光は装置中心軸付近で強く、プラズマが絞られている様子がわかる。 C_3 の磁界を印加しない (**Fig. 9(b)**) と、プラズマの発光は弱くなり、これはイオン電流が小さくなることと一致する。逆方向磁界を印加した場合 (**Fig. 9(c)**)、プラズマの発光領域は広範囲になっている。

3.3. TiN 膜成膜

前節までのイオン電流の計測結果から、成膜は磁界の印加方法次第で P_2 および P_3 の位置の両方で可能であることが予想された。そこで、 C_2 と C_3 の磁界を同方向にして成膜する場合を、直線状磁気フィルタ型真空アーク蒸着 (SMT-CAD: Straight Magnetically Transported Cathodic Arc Deposition)、逆方向にして成膜する場合を、カusp磁気配位拡散型真空アーク蒸着 (CMC-DCAD: Cusp Magnetic Configuration-Diffused Cathodic Arc Deposition) と呼ぶことにする。CMC-DCAD の場

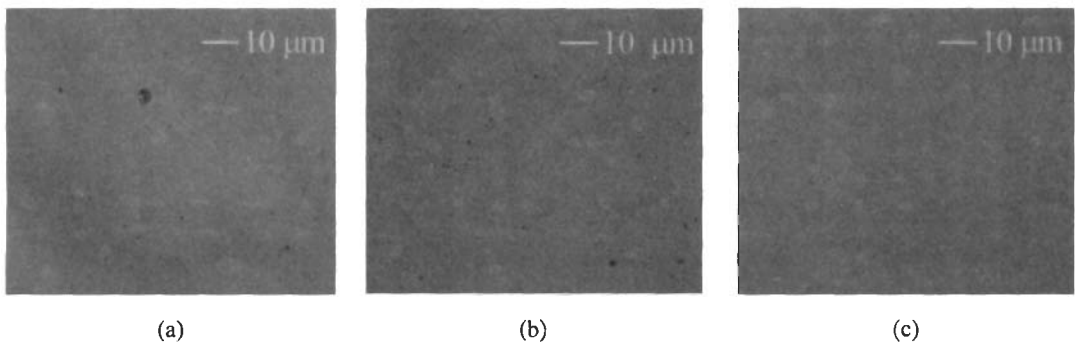


Fig. 10. Photographs of TiN films deposited on Si (100) substrates: (a) SMT-CAD (5 min, $B_{C3} = 4$ mT), (b) CMC-DCAD at P_2 (3 min, $B_{C3} = -2$ mT), and (c) CMC-DCAD at P_3 (15 min, $B_{C3} = -4$ mT) ($B_{C1} = -1$ mT, $B_{C2} = -3$ mT).

合、中心から距離が離れすぎると、成膜速度が落ちてしまう。一方、中心に近いと、陽極表面や接続ダクト内壁で反射したドロップレットが基板まで到達する可能性がある。そこで、ドロップレットが到達しないであろうと想定できる径方向距離を幾何学的に検討したところ、 $r > 125 \text{ mm}$ であればよいと見積もられた。そこで、CMC-DCADの場合の基板位置は $r = 150 \text{ mm}$ とした。また、プロセス室へ引き出されるイオン電流をほぼ同一にするため、成膜前に P_1 の位置でイオン電流を計測し、SMT-CADおよびCMC-DCADの場合のイオン電流を、それぞれ、430 mAおよび404 mAとした。

基板にはSi(100)を用い、 P_2 および P_3 の位置でTiN膜を生成した。基板は加熱せず、バイアスは印加しなかった。生成膜の膜厚を触針型段差計（小坂研究所製、HIPOS-ET10）で計測し、成膜時間で除して成膜速度を求めた。その結果、SMT-CADの場合、 P_2 の位置で64 nm/min、CMC-CADの場合、 P_2 の位置で54 nm/min、 P_3 の位置で4 nm/minであった。この結果から、SMT-CADの成膜速度は、従来のステアド法の32 nm/min（アーク電流：50～60 A、陰極-基板間距離：250 mm、圧力：0.5～1.0 Pa）⁸⁾の約2倍と高速であることがわかった。また、CMC-DCADの場合、 P_2 の位置の成膜速度はSMT-CADのそれより低く、 P_3 の位置では1桁も低くなる。しかしながら、有効成膜面積を見積もれば、 P_2 の位置で約3,000 mm²（ $\approx 30^2 \pi$ ）であるのに対し、 P_3 の位置では約28,000 mm²（ $\approx 300 \times 30$ ）と大面積である。従って、スループットの観点からは、インラインプロセスを採用する場合にはSMT-CADが適切であり、バッチプロセスを採用する場合にはCMC-DCADが有効であると考えてよい。

生成膜の表面様相を光学顕微鏡（Axiophot, Zeiss 製）を用いて観察した結果をFig. 10に示す。同観察を複数回行ってドロップレット数を数え、1 min間成膜した場合に1 mm²あたりに存在するドロップレット数に換算した。その結果、SMT-CADの場合(a)、3,400 個/min/mm²、CMC-DCADの場合、 P_2 の位置(b)で1,700 個/min/mm²、 P_3 の位置(c)で150 個/min/mm²であった。どの場合も、ステアド法を用いて生成した場合のドロップレット数310,000 個/min/mm²⁹⁾よりも少ないことがわかる。ドロップレットの付着を抑制したシールド法の場合でも、50,000 個/min/mm²であった⁹⁾。従って、ドロップレットの数は、シールド法と比較しても、SMT-CADでは1/15、CMT-DCADの場合、 P_2 の位置で1/30、 P_3 の位置で1/330に減少することがわかった。

4. まとめ

ストレートタイプの磁気フィルタ型真空アークプラズマ装置におけるイオン電流を計測した。また、直線状磁気フィルタ型真空アーク蒸着法（SMT-CAD）およびカスプ磁気配位拡散型真空アーク蒸着（CMC-DCAD）法でTiN膜を生成した。本論文で得られた主要な結果を以下に示す。

- (1) アークプラズマ発生室において C_1 と C_2 との磁界の向きを同方向とすると、逆方向とした場合に比べ、約5倍のイオン電流をプロセス室内へ引き出すことができる。
- (2) プロセス室で C_2 と C_3 の磁界の向きを逆にするCMC-DCADの場合、成膜位置を P_3 とすると成膜速度は4 nm/minで、SMT-CADの場合の64 nm/minと比較して1/10以下になる。
- (3) 成膜位置を P_3 としたCMC-DCADの場合、有効成膜面積は約28,000 mm²で、SMT-CADの場合の約3,000 mm²と比較して10倍近くになる。
- (4) ドロップレット数はSMT-CAD法およびCMC-DCAD法のどちらの場合も、従来のステアド

法より2桁、シールド法より1桁以上少なくなる。

本研究の一部は、文部省科学研究費補助金基盤研究(B)および奨励研究(A)の援助を受けて行われた。

参考文献

- 1) I. I. Aksenov, I. I. Konovalov, E. E. Kudryavtseva, V. V. Kuncheko, V. G. Padalka, and V. M. Khoroshikh: "Droplet phase of cathode erosion in a steady vacuum arc", *Sov. Phys. Tech. Phys.*, **29**, 893 (1984)
- 2) P. D. Swift: "Macroparticles in films deposited by steered cathodic arc", *J. Phys. D: Appl. Phys.*, **29**, 2025 (1996)
- 3) H. Takikawa, N. Kawakami, and T. Sakakibara: "N₂ Gas Absorption in Cathodic Arc Apparatus with an Al Cathode Under Medium Vacuum, *IEEE Trans. Plasma Sci.*, **27**, 1034 (1990)
- 4) A. I. Vasin, A. M. Dorodnov, and V. A. Petrosov: "Vacuum arc with a distributed discharge on an expandable cathode", *Sov. Tech. Phys. Lett.*, **5**, 634 (1979)
- 5) L. P. Sablev: "УПРАВЛЕНИЕ ДВИЖЕНИЕМ КАТОДНОГО ПЯТНА В АКУУМНОЇ ДУГИ", *Prib. Tekh. Eksp.*, **4**, 268 (1979); Translated to L. P. Sablev: "Control of the motion of the cathode spot of a vacuum arc", *Instrum. Exp. Tech.*, 634 (1980)
- 6) H. Brandolf: US Patent 4-511-593, (1985)
- 7) Y. Taki, T. Kitagawa, and O. Takai: "Preparation of diamond like carbon thin films by shielded arc ion plating", *J. Mater. Sci. Lett.*, **16**, 553 (1997)
- 8) H. Takikawa, K. Shinsako, and T. Sakakibara: "TiN/Ti film formation by vacuum arc deposition with droplet shield plate", *Thin Solid Films*, **75/76**, 316, 73 (1998)
- 9) R. Miyano, K. Kimura, K. Izumi, H. Takikawa, and T. Sakakibara: "Preparation of metal nitride and oxide thin films using shielded reactive vacuum arc deposition", *Vacuum*, **59**, 159 (2000)
- 10) I. I. Aksenov, V. A. Belous, V. G. Padalka, and V. M. Khoroshikh: "Transport of plasma streams in a curvilinear plasma-optics system", *Sov. J. Plasma Phys.*, **4**, 425 (1978)
- 11) D. A. Karpov: "Cathodic arc sources and macroparticle filtering", *Surf. Coat. Technol.*, **98**, 22 (1997)
- 12) R. L. Boxman, D. M. Sanders, and P. J. Martin (Eds.): *Handbook of Vacuum Arc Science and Technology: Fundamentals and Applications*, Noyes Publications, New Jersey, (1995)
- 13) A. Anders, S. Anders, and I. G. Brown: "Transport of vacuum arc plasma through magnetic macroparticle filters", *Plasma Sources Sci. Technol.*, **4**, 1 (1995)
- 14) P. J. Martin, R. P. Netterfield, and T. J. Kinder: "Ion-beam-deposited films produced by filtered arc evaporation", *Thin Solid Films.*, **193/194**, 77 (1990)