

# パルス電流真空アークの放電特性と ドロップレット抑制効果

豊橋技術科学大学 木村圭作, 滝川浩史  
榊原建樹

## Discharge Characteristics of Vacuum Arc with Pulse Current and Efficiency of Macrodroplet Suppression

Keisaku KIMURA, Hirofumi TAKIKAWA, and Tateki SAKAKIBARA

Toyohashi University of Technology

Cathodic vacuum arc exhibits a superior potential for the application of high-energy ion plating deposition. However, the major disadvantage that the macrodroplets are emitted from the cathode spot, is involved. In the present paper, the possibility of reducing the macrodroplets emission using the vacuum arc with dc pulse current was examined. First, the condition for long-lasting discharge in the pulse arc mode was investigated as functions of pulse frequency, duty ratio, and base current. It was found that, higher duty ratio was required at lower frequency in order to last the arc, and that higher frequency was required at lower duty ratio. Secondly, TiN, TiO<sub>2</sub>, AlN, and Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> films were prepared by both dc arc and pulse arc, and the number of macrodroplets on the films was counted. As a result, the number of large droplets were reduced, although no obvious suppression of the small droplet number was appeared.

**Keywords:** Vacuum arc deposition, Pulse arc, Discharge characteristics, Macrodroplet suppression

### 1. はじめに

従来、反応性真空アーク蒸着法は、切削治具への耐摩耗性 TiN 膜コーティングに利用されている<sup>1)</sup>。近年では、同手法を用いて、光学膜として利用可能な TiO<sub>2</sub> や AlN などの誘電体薄膜も形成できることがわかってきた<sup>2,3)</sup>。しかしながら、真空アークにおいては、陰極点から金属イオンが放出されると同時に、金属の溶融微粒子、いわゆるドロップレットが放出され、それが生成膜に付着して膜質の低下を招いてしまうことが重大な問題である<sup>4)</sup>。これまでにドロップレット問題を解決するための様々な手法が開発されており、それらの手法を大別すると、陰極点を制御してドロップレットの発生自体を抑制する手法と、発生したドロップレットを膜に堆積させないように工夫する手法となる。前者の手法には、磁界によって陰極点を高速に運動させる方法（ステアド法：steered arc）<sup>5)</sup>、陰極を加熱して陰極点を消滅させることでドロップレットの発生を抑制する方法（分散

放電法：distributed discharge arc)<sup>6)</sup>、高速パルス電流を用いて固体を昇華させ、その昇華ガス中に大電流を流してアーク放電を発生させる方法（シャンティングアーク法：shunting arc)<sup>7)</sup>がある。後者の手法としては、金属プラズマのみを磁気的に成膜位置に輸送する手法（磁気フィルタードアーク法：magnetic filtered arc)<sup>8),9)</sup>、遮蔽板を用いてドロップレットをブロックしてしまう手法（シールドアーク法：shielded arc)<sup>10)</sup>、陽極と陰極とを同軸上に配置した手法（同軸アーク：coaxial arc)<sup>11)</sup>がある。筆者らは、これらの手法のうち、シールドアークを用いて、各種の酸化物および窒化物薄膜を生成してきている<sup>12)-16)</sup>。

以上のような背景のもと、最近、繰り返しパルス電流を用いてドロップレットの発生を抑制しようという手法が提案された<sup>17),18)</sup>。本論文では、まず、繰り返し直流パルスアーク放電に関し、安定持続放電領域を把握し、プラズマ状態を分光法で診断する。次に、TiN, TiO<sub>2</sub>, AlN, および Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 膜を生成してそれらの膜表面におけるドロップレットの付着状態を観察し、本手法によるドロップレット削減の有効性を評価する。

## 2. 実験装置

真空アーク蒸着装置を Fig. 1 に示す。直径 400 mm、長さ 600 mm の SUS304 製円筒型チャンバを陽極（接地）とし、その一端に陰極金属（Ti あるいは Al）を取り付けたものである。陰極と対向する位置に、SUS304 製、直径 150 mm の基板固定台を配置した。電源には、溶接用インバータ直流パルス電源（ダイヘン社製インバータアルゴ 300P、定格出力電流：300 A、無負荷電圧：65 V、負荷電圧：30 V、直流・パルス電流モード切替機能付、パルス周波数：0.5~500 Hz、デューティ比：15~85%）を用いた。導入ガスはマスフローコントローラで流量を一定に制御して真空チャンバに導入した。また、圧力は、電動バタフライバルブを用い、排気コンダクタンスを PID 制御して一定に保った。アークは、Mo 製のトリガ電極を陰極に一旦接触させ、直後に引き離すことで、陰極-陽極間に発生させた。

## 3. 放電特性

### 3.1. 直流アークの放電持続領域

パルスアーク放電におけるベース電流に必要な値を見積もるために、まず、直流アー

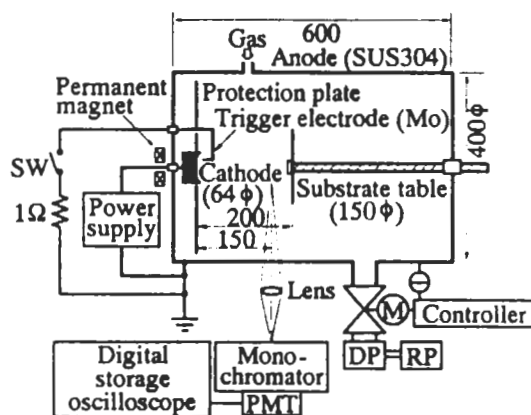


Fig. 1. Vacuum arc deposition apparatus (M: motor, DP: diffusion pump, RP: rotary pump, PMT: photomultiplier tube).

クに関し、放電が持続する圧力およびアーク電流の関係を把握することにした。すなわち、圧力および  $N_2$  ガス導入量を一定に保った状態で、アーク電流を 60 A から徐々に減少させ、放電の持続時間を調べた。その結果を Fig. 2 に示す。実験条件は、陰極：Ti,  $N_2$  ガス導入流量：20 ml/min とした。同図において、実線曲線から右上の領域は放電が 3 min 以上持続する電流・圧力領域であり、破線曲線から左下の領域は放電の持続時間が 10 s 以下の領域である。実線曲線と破線曲線とはほぼ平行であり、両者に挟まれた領域では持続時間が 10 s ~ 3 min である。便宜上、ここでは、実線の電流を放電持続最低電流と呼ぶことにする。放電持続最低電流は、圧力 0.1 Pa では約 50 A, 0.3 ~ 2 Pa の範囲では 25 ~ 30 A, 5 Pa では約 20 A である。このように、圧力が高くなると、放電持続最低電流は減少する傾向にあることがわかった。

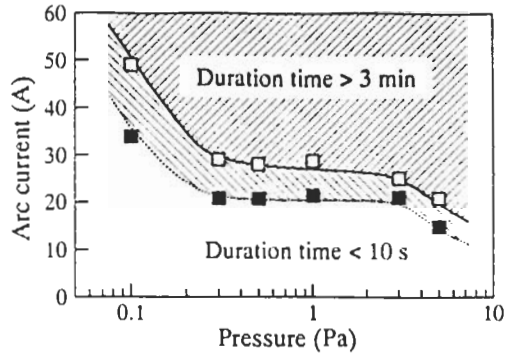


Fig. 2. Arc current for continuous discharge as a function of pressure (cathode: Ti,  $N_2$ , gas flow rate: 20 ml/min).

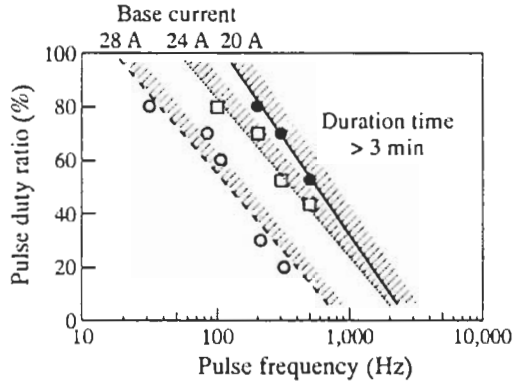


Fig. 3. Pulse duty ratio against frequency characteristics for 3-min continuous discharge (cathode: Ti,  $N_2$ , gas flow rate: 20 ml/min, pressure: 1 Pa, pulse current: 80 A).

### 3.2. パルスアークの放電持続領域

パルスアーク放電の場合、直流アークの場合のパラメータに加えて、パルス周波数、パルス電流、ベース電流、およびデューティ比（1周期におけるパルス電流印加時間比）がパラメータとなる。そこで、ここではパルス電流を 80 A 一定とし、ベース電流をパラメータとして、放電が持続するデューティ比と周波数との関係を調べた。3 min 以上放電が持続したデューティ比と周波数との関係をプロットした結果を Fig. 3 に示す。同図において各線の右上の領域が放電の持続する領域である。便宜上、この線を持続境界線と呼ぶことにする。同図から以下のことがわかる。まず、ベース電流が一定の時、持続境界線はほぼ直線になる。この時、放電を持続させるためには、周波数が低い場合には高いデューティ比が必要であるが、周波数が高くなるとデューティ比は低くてよい。一方、ベース電流を減少させると、持続境界線は右上にシフトする。すなわち、ベース電流が低い場合に放電を持続させるためには、周波数を増加させるか、デューティ比を増加させる必要があることになる。また、Fig. 2 との比較から、ベース電流が直流アーク

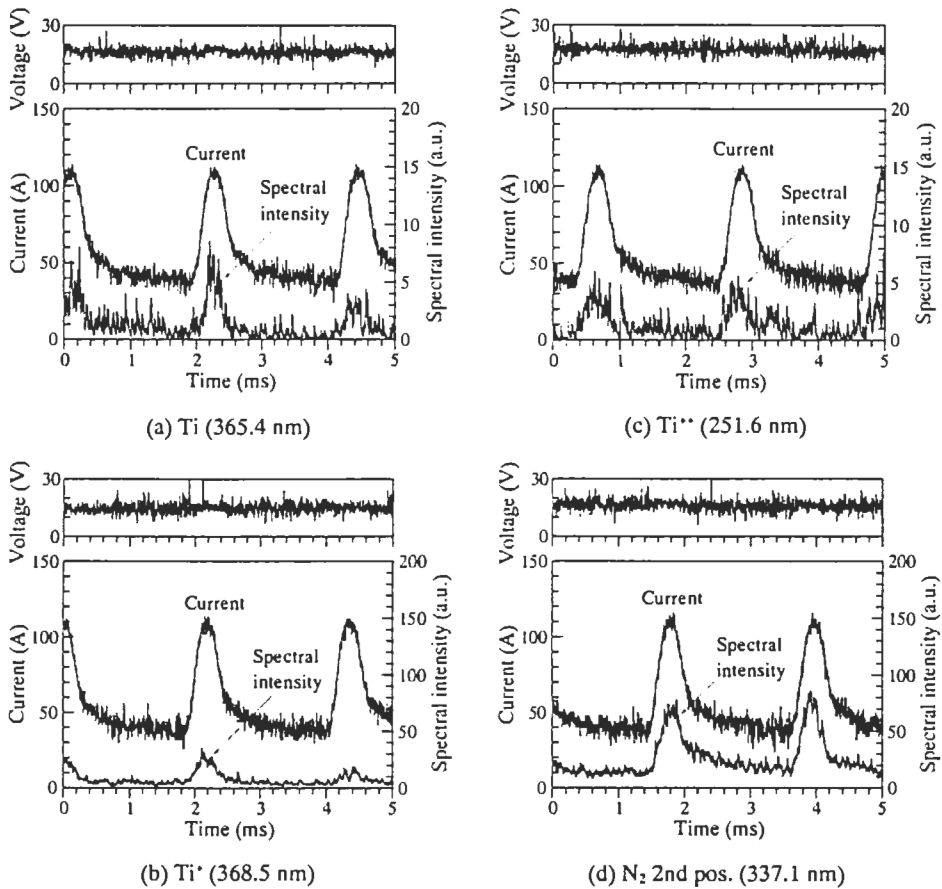


Fig. 4. Waveforms of arc current and voltage and time variations of emission spectra in pulse arc (cathode: Ti,  $N_2$  gas flow rate: 20 ml/min, pressure: 1 Pa, pulse current: 110 A, base current: 35 A, frequency: 500 Hz, duty ratio: 20%).

の放電持続最低電流より低くても、放電が持続することがわかる。

次に、Fig. 3の持続境界からわずかに外れた条件、すなわち、ベース電流：20 A、周波数：500 Hz、デューティ比：40%の条件で、パルス電流を80~160 Aと変化させて放電が3 min以上持続するかどうかを調べた。その結果、パルス電流を増加させてもアーク放電は持続しなかった。このことから、パルスアーク放電の持続性には、パルス電流よりベース電流の方が重要であると判断できる。

### 3.3. パルスアークの分光診断

電極間の放電状態を把握するために、アーク電圧および電流の時間変化とアーク放電から放射されるスペクトルとを、デジタルストレージオシロスコープを用いて同時に計測した。スペクトルの計測位置は、陰極表面から150 mmの位置とした。実験条件は、陰極：Ti、 $N_2$ ガス導入流量：20 ml/min、パルス電流：110 A、ベース電流：35 A、パルス周

波数：500 Hz，デューティ比：20% とした。Ti 陰極 N<sub>2</sub> ガス導入の直流アークの場合，アークプラズマからは Ti，Ti<sup>+</sup>，Ti<sup>++</sup>，N<sub>2</sub>，および N<sub>2</sub><sup>+</sup> の放射スペクトルが観測されている<sup>19)</sup>。そこで，今回は，Ti：365.4 nm（遷移： $a^3F_4 - y^3G_5^0$ ），Ti<sup>+</sup>：368.5 nm（遷移： $b^2D_{3/2} - y^2F_{2/2}^0$ ），Ti<sup>++</sup>：251.6 nm（遷移： $^3D_3 - ^3F_4^0$ ），N<sub>2</sub>：337.1 nm（遷移：2nd Positive (0,0)， $C^3\Pi_u - B^3\Pi_g$ ）のスペクトルを選択した。

Fig. 4 に計測結果を示す。この結果から，まず，アーク電流の波形は完全な矩形ではないものの，パルス周波数，電流値，デューティ比はほぼ設定通りとなっていることがわかる。一方，アーク電圧はパルス的ではなく，15～20 V で一定であることがわかる。これは，真空アークのアーク電圧が電流値にあまり依存しないことと一致している。また，アークプラズマから放射されるどのスペクトルも，パルス電流の波形に比例した形状となっている。このことから，電極間のプラズマ状態はアーク電流に支配されていることがわかる。

#### 4. ドロップレット抑制効果

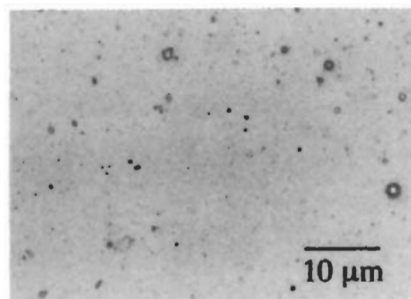
##### 4.1. 各種薄膜の生成

ドロップレットの発生は，陰極点の超過熱に起因すると考えられている。例えば，ステアド法では，陰極点を高速に運動させることで陰極表面における同一箇所の超過熱を防ごうという考えに基づいている。従って，繰り返し直流パルス法の場合，できるだけ高速に電流の強弱を変化させた方がよいことになる。そこで，今回は，電源の最高周波数である 500 Hz で成膜実験を行うことにした。TiN，アモルファス TiO<sub>2</sub>，AlN，およびアモルファス Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 膜を試すため，実験条件は以下の通りとした。陰極：Ti および Al，導入ガス種：N<sub>2</sub> および O<sub>2</sub>，ガス導入量：20 ml/min，圧力：1 Pa，成膜時間：5 min，基板：ソーダガラス（37×26 mm<sup>2</sup>）および Si(100)（10×10 mm<sup>2</sup>）。アーク電流に関しては，パルス周波数：500 Hz，パルス電流：110 A，ベース電流：35 A，デューティ比：20%（すなわち，時間平均電流は 50 A）とした。比較のため，直流アーク放電（電流：50 A）でも同様な成膜条件で各膜を生成した。

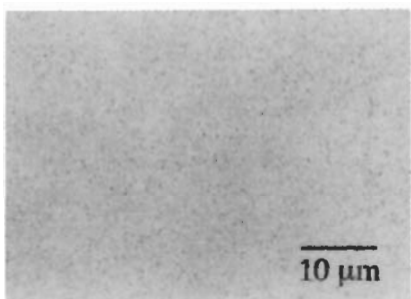
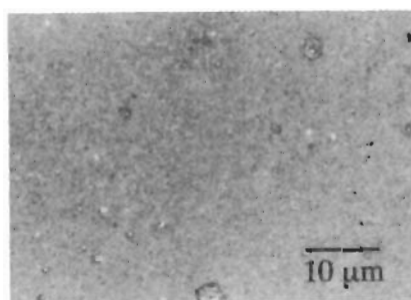
参考のため，陰極の損耗速度を計測した。その結果を Table 1 に示す。直流アークとパルスアークとで明らかな違いは見られない。これは，直流アークは電流 50 A，パルスアークは時間平均電流が 50 A であり，アーク電圧は両者ともほぼ 15～30 V（材料による違い）と同じで，結局，入力電力に差異がないためであると解釈できる。

Table 1. Erosion rates of cathode targets for various film depositions (pressure: 1 Pa, gas flow rate: 20 ml/min). (unit: mg/min)

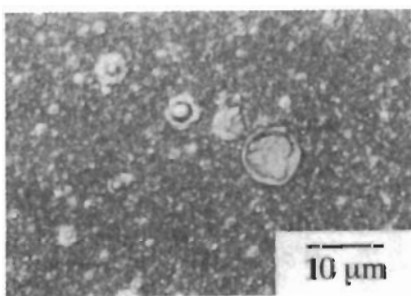
Arc mode / Film	DC (50 A)	Pulse (Time average, 50 A)
TiN	22	22
TiO <sub>2</sub>	24	24
AlN	22	22
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	32	28



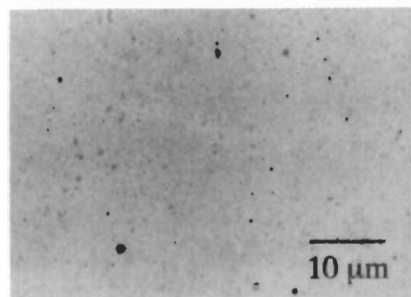
(a) TiN

(b) TiO<sub>2</sub>

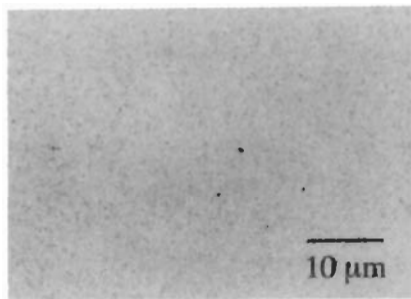
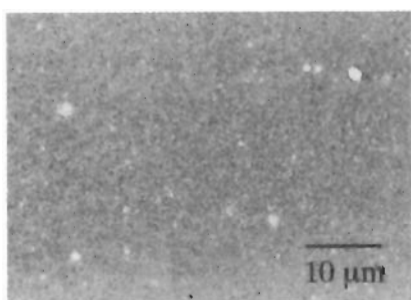
(c) AlN

(d) Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>

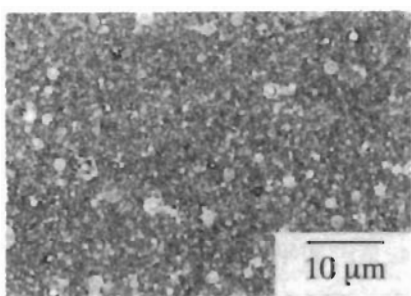
**Fig. 5.** Optical photographs of films deposited on Si substrate by DC arc (arc current: 50 A, pressure: 1 Pa, gas flow rate: 20 ml/min).



(a) TiN

(b) TiO<sub>2</sub>

(c) AlN

(d) Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>

**Fig. 6.** Optical photographs of films deposited on Si substrate by pulse arc (pulse current: 110 A, base current: 35 A, frequency: 500 Hz, duty ratio: 20%, pressure: 1 Pa, gas flow rate: 20 ml/min).

## 4.2. 生成膜の表面様相

直流アークおよびパルスアークでガラス基板上に生成した膜を肉眼で観察したところ、両方の場合とも、TiN は金色、TiO<sub>2</sub> は透明、AlN および Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> はメタリックシルバー色を呈していた。それらの膜の表面を光学顕微鏡で観察した結果をそれぞれ Fig. 5 および Fig. 6 に示す。陰極金属およびガス種の違いにより、ドロップレットの大きさ、形状および数が異なることがわかる。例えば、Ti 陰極の場合、

ドロップレットは大きなものでも直径数  $\mu\text{m}$  程度であり、ほとんどが球状であるのに対し、Al 陰極の場合、直径十数  $\mu\text{m}$  程度の王冠状のものが多数見られる。これは、金属の融点の違いによるものであると考えられる。すなわち、Ti (融点: 1,660°C) のドロップレットが固体状であるのに対し、Al (融点: 660°C) のドロップレットは液体状であろうということである。

## 4.3. ドロップレットの抑制

ドロップレットの数量を定量的に比較するため、光学写真において  $10 \times 10 \mu\text{m}^2$  の面積を任意に 3 個所以上選び、そこに存在するドロップレットの数を直径  $1 \mu\text{m}$  以上のもの (large) とそれ以下のもの (small) に分けて数え、平均化した。その結果を Table 2 に示す。直流アークの場合に較べ、パルスアークの場合、ドロップレットの数が若干減少する場合もある。Keutel らは、パルス電流: 310 A, ベース電流: 100 A, 周波数: 300 Hz, デューティ比: 約 20% の Ti 陰極 N<sub>2</sub> 導入パルスアークの場合、ドロップレットの削減効果は 15% であるとしている<sup>17)</sup>。今回の結果では、small サイズのドロップレットの数はそれほど削減されなかったが、large サイズのそれは 40~50% 程度の削減が見られる。

## 5. まとめ

直流真空アーク放電および繰り返し直流パルス電流を用いた真空アーク放電 (パルスアーク) の放電持続領域を実験的に明らかにし、パルスアークの放電状態を観察した。更に、いくつかの薄膜を生成し、ドロップレットの削減効果を調べた。本論文で得られた主な結果を以下にまとめる。

- (1) 直流アーク放電を連続して維持できる放電持続最低電流は、圧力が低い場合には高く、圧力が高い場合には低くなる傾向にある。
- (2) パルスアークを連続して持続させるには、ベース電流が一定の場合、パルス周波数が低いときにはパルスデューティ比を高くしなければならず、デューティ比が低いときに

Table 2. Number of large ( $>1 \mu\text{m}$ ) and small ( $<1 \mu\text{m}$ ) macrodroplets on the film area of  $100 \mu\text{m}^2$  (pressure: 1 Pa, gas flow rate: 20 ml/min).

Film \ Droplet size	Large		Small	
	DC	Pulse	DC	Pulse
TiN	1.3	0.7	24.6	28.3
TiO <sub>2</sub>	0	0	110.7	106.3
AlN	0.7	0.3	>200	>200
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	4	3.7	>200	>200

は周波数を増加させなければならない。

(3) パルスアークの電極間プラズマの状態はパルス電流に追従する。

(4) パルスアークで生成した膜上のドロップレットの数は直流アークで生成した場合と比較して同等であるものの、大きなドロップレットの数は減少する。

なお、本研究の一部は科学研究費補助金（奨励研究および基盤研究）の援助を受けて行われた。

## 参考文献

- 1) P. J. Martin, R. P. Netterfield, D. R. McKenzie, I. S. Falconder, C. G. Pacey, P. Tomas and W. G. Sainty: "Characterization of a Ti vacuum arc and the structure of deposited Ti and TiN films", *J. Vac. Sci. Technol. A*, **5**, 22 (1987)
- 2) 滝川, 笹岡, 榊原: 「反応性真空アーク蒸着法によるアナターゼ型 TiO<sub>2</sub> 膜の生成」, *電学論 A*, **117**, 866 (1997)
- 3) 滝川, 小切山, 榊原: 「真空アーク蒸着法によって生成された AlN 膜の膜質」*電学論 A*, **111**, 1042 (1991)
- 4) R. L. Boxman, D. M. Sanders and P. J. Martin (Eds.): *Handbook of Vacuum Arc Science and Technology: Fundamentals and Applications*, Noyes Publications (1995) New Jersey
- 5) P. D. Swift, "Macroparticles in films deposited by steered cathodic arc", *J. Phys. D: Appl. Phys.*, **29**, 2025 (1996)
- 6) A. I. Vasin, A. M. Dorodnov and V. A. Petrosov: "Vacuum arc with a distributed discharge on an expendable cathode", *Sov. Tech. Phys. Lett.*, **5**, 634 (1979)
- 7) 行村: 「低気圧中におかれた金属線の加熱によるシャンティングアークの発生 = パルス金属イオン源の基礎研究 =」, *電学論 A*, **118**, 954 (1999)
- 8) 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)
- 9) P. J. Martin, A. Bendavid and H. Takikawa: "Ionized plasma vapor deposition and filtered arc deposition; process, properties and applications", *J. Vac. Sci. Technol. A*, **17**(4), 2351 (1999)
- 10) H. Brandolf: US Patent 4,511,593 (1985)
- 11) 茶谷原, 杵野, 坪内, 堀野, 木野, 藤井: 「同軸型真空アーク蒸着源」, *真空*, **40**, 300 (1997)
- 12) H. Takikawa, K. Shinsako and T. Sakakibara: "TiN/Ti film formation by vacuum arc deposition with droplet shield plate", *Thin Solid Films*, **316**, 73 (1998)
- 13) H. Takikawa, T. Matsui, T. Sakakibara, A. Bendavid and P. J. Martin: "Properties of titanium oxide film prepared by reactive cathodic vacuum arc deposition", *Thin Solid Films*, **348**, 145 (1999)
- 14) H. Takikawa, N. Kawakami and T. Sakakibara: "Synthesis of *a*-axis-oriented AlN film by a shielded reactive vacuum arc deposition method", *Surf. Coat. Technol.*, **120/121**, 383 (1999)
- 15) 滝川, 松井, 宮野, 榊原, A. Bendavid, P. J. Martin: 「種々の反応性真空アーク蒸着装置によるアモルファス酸化チタン膜の生成」, *電学論 A*, **119**, 1243 (1999)
- 16) 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*, submitted.
- 17) K. Keutel, H. Fuchs, H. Mecke and Ch. Edelmann: "Modified pulse arc deposition for reducing of droplet emission", *IEEE 18th Int. Symp. Discharges and Electrical Insulation in Vacuum*, 562 (1998) Eindhoven
- 18) M. Ellrodt and H. Mecke: "Possibilities of influencing vacuum arc evaporation by time-dependent arc current", *Surf. Coat. Technol.*, **74-75**, 241 (1995)
- 19) 榊, 榊原: 「チタン陰極室導入中真空アーク放電におけるプラズマパラメータの圧力依存性」, *電学論 A*, **111**, 20 (1991)