

氏名	千葉 忍
学位の種類	博士(工学)
学位記番号	博甲第842号
学位授与の日付	平成18年9月28日
学位授与の要件	課程博士(学位規則第4条第1項)
学位授与の題目	酸素イオンのスパッタ照射による酸化物薄膜の形成の研究
論文審査委員(主査)	佐々木 公洋(自然科学研究科・教授)
論文審査委員(副主査)	久米田 稔(自然科学研究科・教授), 森本 章治(自然科学研究科・教授), 猪熊 孝夫(自然科学研究科・助教授), 畑 朋延(研究成果活用プラザ石川館長・名誉教授)

This technology is a high rate deposition method to produce oxide thin films. The system is divided into two regions, metal sputtering region and oxidation region. This technology at first an extremely thin metal thin film is deposited by dc magnetron sputtering onto the substrates and successively oxidized immediately by oxygen ion implantation. The substrates pass under the metal deposition and the ion implantation region and by repeating these processes, multi-layer oxide thin films are obtained. The purpose of this study is the mass production coming to practical use of this technology. This practical system has seven circular targets. Then each target is excited with individual dc power supply. It is attempting for film thickness to be equalized thus in the effective deposition area. The uniformity of thickness and refractive index depend on the uniformity of partial pressure in metal sputtering region and oxidation region. The uniformity of  $\text{SiO}_2$  and  $\text{Nb}_2\text{O}_5$  deposited by the practical system is  $\pm 1.05\%$  and  $\pm 1.43\%$ , respectively. By using the practical system, four-layer anti-reflection films deposited with  $\text{Nb}_2\text{O}_5/\text{SiO}_2$  on ARTON. It found that the reflectivity characteristic was uniform and stable.

情報通信関連機器の高性能化と普及に伴い、光学薄膜は様々な分野で広く使われるようになってきた。現代では発行素子、カラー表示器、光通信、人工衛星、半導体レーザー、情報産業機器や我々の生活に身近なメガネ、サングラス、住宅建材などにも応用されていて、いまや必要不可欠な存在となっている。その一方で、このように光学薄膜が普及するにつれ、これらの光学部品に対する要求仕様は更に厳しくなっている。それに伴い光学薄膜の成膜技術は様々な方法が開発され、従来はEB蒸着法やIAD(Ion beam Assisted Deposition)法などの蒸着技術を主流に光学薄膜は作製されているが、近年、スパッタリング法やウェットプロセスによる技術もが提案されている。しかしながら、膜質、設備のイニシャルコスト、製造コストなどの関係から、その普及率は低く、使用される用途が限られている。

元来スパッタリング法で酸化物薄膜を形成する場合、その成膜レートは低いとされていた。この酸素イオンのスパッタ照射による酸化物薄膜形成技術は、酸化物を形成するための酸化過程と、薄膜を堆積する過程を分けることにより、酸化物薄膜を高速で成膜するこ

とが可能な成膜法である。装置の基本的な構成を図1に示す。またその酸化方法は、電極の面積比によってアノードとカソードが決まる高周波スパッタリングの現象を利用することにより（図2）、事前に堆積した金属極薄膜に酸素イオンをスパッタ照射して酸化を行っている。したがってこの酸化源の構造は単純であり、設備のイニシャルコストを抑えることができる。

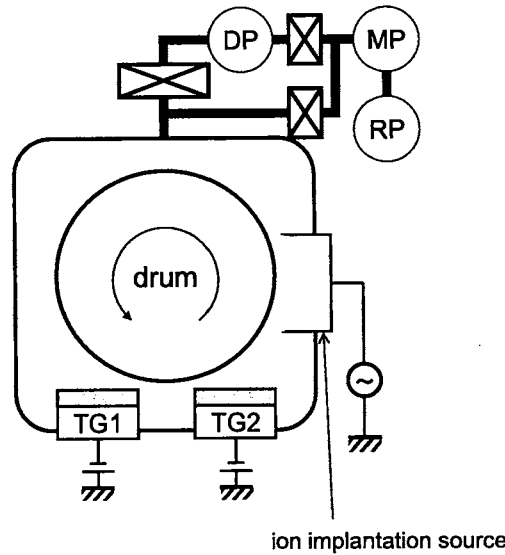
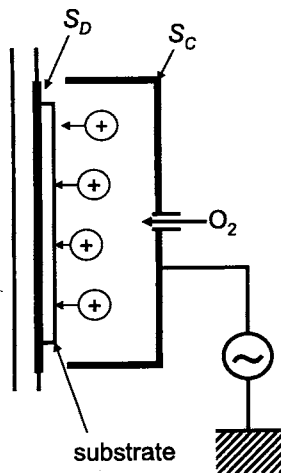


図1. 装置の構成



酸化源の壁面の面積 :  $S_c$   
 酸化源の前を通過するドラムの面積 :  $S_d$

図2. 酸化源の構造

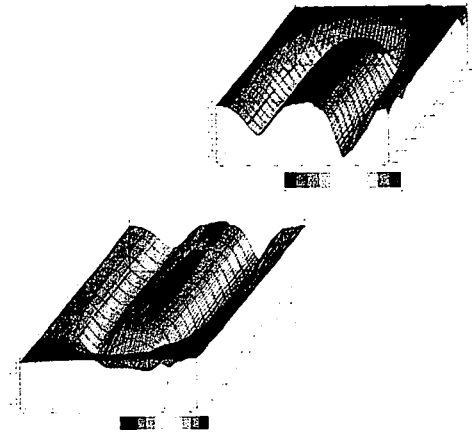


図3. ターゲットのエロージョン

本研究は、まずデモ装置を製作して酸化物薄膜形成の確認と、装置の大型化に伴う成膜プロセスの安定性について検討した。そして量産実用化を目的とした大型成膜装置の作製に向けて、装置構成上の問題点などの洗い出しを行った。光学薄膜作製の量産実用化には膜厚、光学特性の均一化が重要である。成膜範囲はドラムの側面であり、その広さは  $0.72 \phi \times 0.56m^2$  である。ターゲットの形状は  $762 \times 127mm^2$  である。金属成膜エリアの圧力分圧

分布は、ドラムの高さ方向における膜厚分布に依存することが判った。また今回、ターゲットのエロージョンに偏りが生じた(図3)。その要因はターゲット表面の磁場強度に偏りが生じていたためであるが、このようになるとターゲットの使用効率が悪くなり、且つ

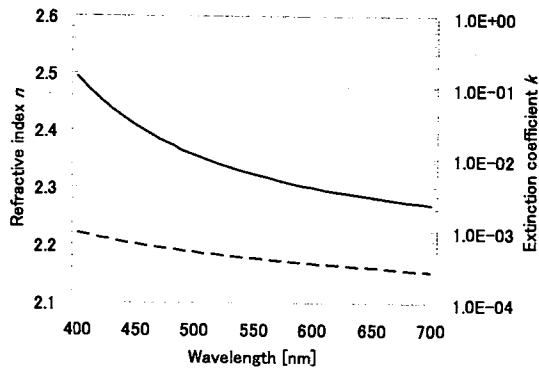


図4. Nb<sub>2</sub>O<sub>5</sub>の波長分散特性

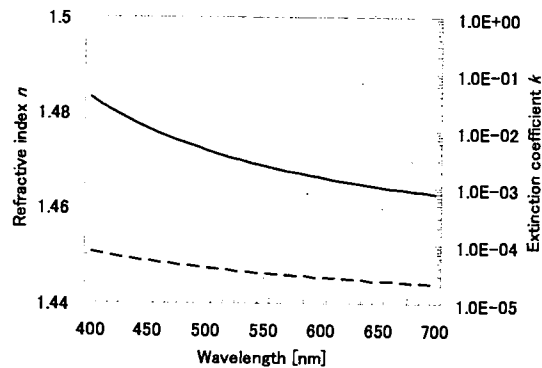


図5. SiO<sub>2</sub>の波長分散特性

膜厚分布の均一性にも影響を及ぼす。デモ装置では、核型のターゲットを使用しているが、これ一つで成膜有効範囲の膜厚を均一にすることは困難であることを認識した。しかしながら、本成膜法で形成される酸化物薄膜の光学特性や膜質については、従来のEB蒸着法で形成される酸化物薄膜(基板加熱なし)よりも吸収の少ない酸化物薄膜を得ることができた。

次にデモ装置での問題点の改善を図り、大型成膜装置を作製し、その改善成果と形成される酸化物薄膜の光学特性および均一性について評価を行った。その改善点は次の通りである。

- ① 金属成膜エリアおよび酸化エリアの分圧分布の均一化を図るため、ガス導入口の位置をエリアの上下2箇所に設置した。
- ② ドラムの高さ方向における膜厚分布の均一化を図るため、ターゲットの形状を角型から円形にして、それを7枚1組で設置した。
- ③ ターゲットの使用効率向上のため、マグネットを駆動式にした。
- ④ 多種の光学多層膜に対応できるように、金属ターゲット材料を3種類設置できるようにした。

大型成膜装置により形成されたNb<sub>2</sub>O<sub>5</sub>とSiO<sub>2</sub>の光学特性はλ=520nmにおいて、屈折率nはそれぞれ2.34, 1.47で、消衰係数kはそれぞれ4.60×10<sup>-4</sup>, 3.73×10<sup>-5</sup>であった。Nb<sub>2</sub>O<sub>5</sub>とSiO<sub>2</sub>の波長分散特性は図4, 5の通りである。

また、酸化エリアにおける放電で得られる直流電圧V<sub>DC</sub>は均一な酸化物薄膜を形成する目安のパラメーターになることが判った。このV<sub>DC</sub>がそれぞれの酸化エリアで異なった場合、成膜有効範囲において、上段と下段で形成される酸化物薄膜の屈折率が変わる。V<sub>DC</sub>がほぼ同じになるように、酸化エリアの酸素流量条件を最適化して酸化物薄膜を形成する

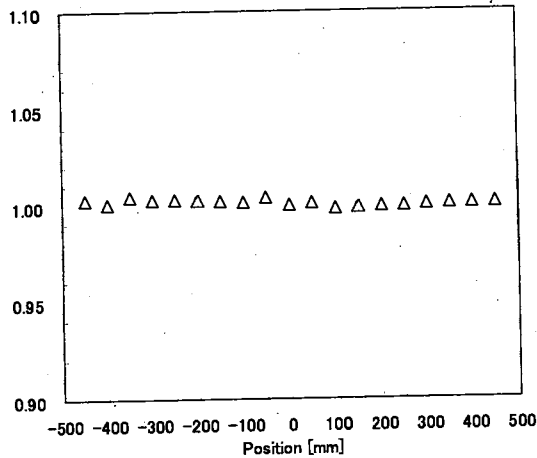


図 6. Nb<sub>2</sub>O<sub>5</sub>の高さ方向における膜厚分布

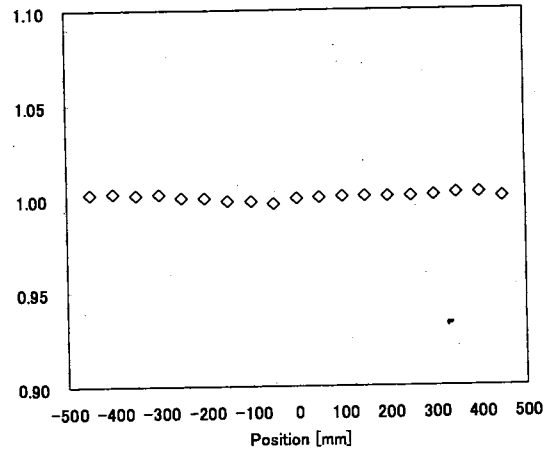


図 7. SiO<sub>2</sub>の高さ方向における膜厚分布

と、上限段の屈せ率の差は小さくなった。さらに、酸化エリアにおいて、酸素流量、酸素イオンスパッタ照射出力による放電安定領域の検証をした結果、酸化エリアにおいて放電が維持可能な絶対圧力は決まっており、金属成膜エリアで堆積される金属膜とそれが酸化エリアで酸素と結合する酸素量によって、その安定領域が決まることが判った。即ち、酸化エリアで結合する酸素量が多くなると酸化エリアの酸素分圧は低くなるので、さらに放電が可能な圧力まで酸素を導入することができる。

ドラムの高さ方向における膜厚分布はそれぞれ±1.43%、±1.05%であった。さらに屈折率分布はともに±0.29%であった。その結果は図 6, 7 に示す通りである。次に、大型成膜装置にて光学多層膜を評価するために、実際に 4 層構成の反射防止膜を作製した。そのときの反射率特性の均一性は非常によい結果得られた。また、ARTON 樹脂基板に AR コートし、高温保存試験および人工汗試験を行い膜の信頼性について評価した。いずれの試験においても、マイクロクラックや剥離は見られず、信頼性の高い膜であることが証明された。

酸素イオンのスパッタ照射による酸化物薄膜の形成技術は、膜を堆積する過程とそれを酸化する過程を分けることにより、酸化物薄膜を高速成膜できる技術であり、その酸化原理は非常に簡潔である。この方法で形成される酸化物薄膜は、均一性、光学特性、信頼性においても良好である。したがって成膜有効範囲が広くても（装置の大型化）、安定したプロセスであり、光学多層膜作製において総合的なコスト削減が期待できる技術である。

## 学位論文審査結果の要旨

平成 18 年 8 月 2 日に第 1 回学位論文審査委員会を開催し、提出された学位論文及び関係資料について検討を行い、同 8 月 4 日の口頭発表、第 2 回学位審査委員会において協議の結果、以下の通り判定した。

近年、広範な産業界にわたって多種多様な薄膜の利用が進んでいる。従来光学薄膜は真空蒸着法による生産が一般的であったが、近年の高品質化の要求を満たせなくなってきている。本論文は、「スパッタ照射」という新しい手法を付加したスパッタ法を用いて光学薄膜の大面积、高品位、高スループット化を目指している。

本研究ではまず小型の試作機により、スパッタガスの流入ノズルの位置および数を変え、ガス圧の分布を変えることにより均一な膜厚分布が得られる条件を見出している。実際に  $\text{SiO}_2$ 、 $\text{Nb}_2\text{O}_5$  薄膜をガラス基板上に堆積しその膜特性を評価したところ、従来法の EB 蒸着法で作製したものと比較して、光吸収の少ない欠陥の少ない薄膜が得られていることが明らかになった。さらに、膜を断面方向から観察すると柱状構造は見られず均一であり、それを反映して非常に滑らかな表面モロロジーであった。特に基板との密着性は歴然とした改善が見られた。

試作機の基礎データをもとに生産用の大型生産機を建造した。生産機では大面积化に対応するため、試作機で使用していたスパッタ源を 7 機搭載し、そのおのにおに専用の RF 電源を接続し、スパッタ源の投入電力を個別に制御できるように設計した。この装置により最大 1.2m サイズの基板上で、膜厚分布 $\pm 2\%$ という非常に高い均一性が達成された。

このように本論文は、試作段階を経て実用化に成功しており、工学上の貢献を認めることができ、博士(工学)の学位を授与するに相当の内容と判定される。