

JAERI-M
85-018

重イオン用薄膜ターゲットの調製

1985年3月

立川 敏樹*・西原 進**・竹腰 英子

JAERI-M レポートは、日本原子力研究所が不定期に公刊している研究報告書です。
入手の間合わせは、日本原子力研究所技術情報部情報資料課（〒319-11 茨城県那珂郡東海村）
あて、お申しこしてください。なお、このほかに財団法人原子力弘済会資料センター（〒319-11 茨城
県那珂郡東海村日本原子力研究所内）で複写による実費頒布をおこなっております。

JAERI-M reports are issued irregularly.

Inquiries about availability of the reports should be addressed to Information Division, Department
of Technical Information, Japan Atomic Energy Research Institute, Tokai-mura, Naka-gun,
Ibaraki-ken 319-11, Japan.

© Japan Atomic Energy Research Institute, 1985

編集兼発行 日本原子力研究所
印刷 山田軽印刷所

重イオン用薄膜ターゲットの調製

日本原子力研究所東海研究所物理部
立川 敏樹*・西原 進**・竹腰 英子

(1985年1月25日受理)

重イオン用薄膜ターゲット(20~200) $\mu\text{g}/\text{cm}^2$ を調製する方法, 真空蒸発と重イオンスパッタリングが述べられている。この報告書は薄膜バックキンの処理, バックキンの上への蒸着の調製, バックキンのなしのセルフサポーティング膜の調製に関する3篇に分けられている。いくつかの異なる元素の薄膜調製に対する特別な処方が与えられている。

* 昭和58年度原研特別研究生(九州大学理学部)

** 昭和58年度原研特別研究生(東北大学理学部)

Preparation of Thin Film Targets for Heavy Ions

Toshiki TACHIKAWA^{*}, Susumu NISHIHARA^{**} and Eiko TAKEKOSHI

Department of Physics

Tokai Research Establishment, JAERI

(Received January 25, 1985)

Methods for preparing thin film targets (20 to 200) $\mu\text{g}/\text{cm}^2$ for heavy ions are described : vacuum evaporation and heavy ion sputtering. This paper is divided into three sections dealing with the treatment of the thin film backing, preparation of the deposit on the backings and preparation of self-supporting films with no backing. Specific directions are given for preparing thin films of some different elements.

Keywords; Nuclear Instrument, Target Preparation, Thin Film,
Vacuum Evaporation, Heavy Ion Sputtering

* JAERI Scholarship in the fiscal year of 1984 from Kyushu University

** JAERI Scholarship in the fiscal year of 1984 from Tohoku University

目 次

1. まえがき	1
2. バッキング膜	1
2.1 炭素膜バッキング	1
2.2 アルミニウム膜バッキング	2
2.3 ニッケル膜バッキング	3
2.4 銅膜バッキング	4
3. 真空蒸発法による重イオン用ターゲットの調製	6
3.1 炭素バッキング膜上へニッケル濃縮同位元素薄膜の調整	6
3.2 酸化シリコン (SiO ₂) 薄膜の調製	6
4. 重イオンスパッタ法による重イオン用ターゲットの調製	7
4.1 重イオンスパッタ装置の操作手順	8
4.2 ターゲットの厚さ測定	11
4.3 試料ペレットの製作	13
4.4 ターゲット調製の実例	13
文献	14

Contents

1. Introduction	1
2. Backing film	1
2.1 Carbon film backing	1
2.2 Aluminium film backing	2
2.3 Nickel film backing	3
2.4 Copper film backing	4
3. Preparation of targets for heavy ions by vacuum evaporation technique	6
3.1 Preparation of thin film targets of enriched Ni isotopes on carbon film backing	6
3.2 Preparation of thin film targets of SiO ₂	6
4. Preparation of targets for heavy ions by heavy ion sputtering technique	7
4.1 Operation manual of heavy ion sputtering apparatus...	8
4.2 Measurements of target thickness	11
4.3 Preparation of material pellet	13
4.4 Examples of preparation of targets	13
References	14

1. ま え が き

重イオンによる原子核反応研究では(20~200) $\mu\text{g}/\text{cm}^2$ の薄いターゲットが必要である。このような薄いターゲットは、薄いバックリング膜上にターゲット材料を真空蒸着して調製する。バックリング材料としては、炭素、アルミニウム、ニッケル、金などを用いる。バックリング材料が原子核反応研究上好ましくない時には、バックリングなしのセルフ・サポーティングターゲットを調製しなければならない。

この報告書は、真空蒸発および重イオンスパッタリング法により実際に調製したいくつかのターゲットの処方箋を収録したものである。

2. バ ッ キ ン グ 膜

2.1 炭素膜バックリング

炭素膜¹⁾ $\sim 10 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ のバックリング調製の処方は、1978年から開発された JAERI 長寿命炭素膜の調製法¹⁾に基づき若干の変更を行った。炭素膜 $13 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ 調製に対する全手順を以下に記す。使用した真空蒸着装置は、タンデム加速器棟ターゲット調製室に設置してある炭素膜用特殊蒸着装置²⁾を用いた。

(1) ガラス・スライド^{*}の洗浄法

- (a) ガラス・スライド(1"×3")を1枚ずつ丁寧に洗浄剤を用いて洗い、流水で濯ぐ。
- (b) 超音波洗浄器を用いて、ごみおよび洗剤を十分に流し去り、蒸留水で濯ぐ。
- (c) 蒸留水に浸して沸騰させ、ガラス・スライド表面についているごみなどを取り除く。
- (d) 真空乾燥器に入れて乾燥させる。
- (e) デシケーターに貯蔵する。

(2) 蒸着前の準備

- (a) NaCl 100mg をるつぼで細かくし、アルミニウム箔で包み、200°C ホットプレート上で30分間ベークする。
- (b) 蒸着装置²⁾のベルジャー内を清浄化する。特にガラス・スライド支持棒と電極についている炭素粉をよく取り除いておく。(水冷式 SUS ベルジャーの内径は55cm, 高さ78cm である。)
- (c) ガラス・スライド5枚ずつを支持棒にセットする。3mm ϕ ×25mmの炭素棒(陽極と陰極)を炭素電極ベースに差し込む。0.1mm厚さ、28mm巾、50mm長さのモリブデン板を用いて浅いポートを作り、剥離材用ポートの電極位置にセットする。

* 色なしガラス, MATSUNAMI GLASS INDUSTRIES, LTD, R3703 1st Grade

1. ま え が き

重イオンによる原子核反応研究では(20~200) $\mu\text{g}/\text{cm}^2$ の薄いターゲットが必要である。このような薄いターゲットは、薄いバックリング膜上にターゲット材料を真空蒸着して調製する。バックリング材料としては、炭素、アルミニウム、ニッケル、金などを用いる。バックリング材料が原子核反応研究上好ましくない時には、バックリングなしのセルフ・サポータリングターゲットを調製しなければならない。

この報告書は、真空蒸発および重イオンスパッタリング法により実際に調製したいくつかのターゲットの処方箋を収録したものである。

2. バ ッ キ ン グ 膜

2.1 炭素膜バックリング

炭素膜¹⁾ $\sim 10 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ のバックリング調製の処方は、1978年から開発された JAERI 長寿命炭素膜の調製法¹⁾に基づき若干の変更を行った。炭素膜 $13 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ 調製に対する全手順を以下に記す。使用した真空蒸着装置は、タンデム加速器棟ターゲット調製室に設置してある炭素膜用特殊蒸着装置²⁾を用いた。

(1) ガラス・スライド^{*}の洗浄法

- (a) ガラス・スライド(1"×3")を1枚ずつ丁寧に洗浄剤を用いて洗い、流水で濯ぐ。
- (b) 超音波洗浄器を用いて、ごみおよび洗剤を十分に流し去り、蒸留水で濯ぐ。
- (c) 蒸留水に浸して沸騰させ、ガラス・スライド表面についているごみなどを取り除く。
- (d) 真空乾燥器に入れて乾燥させる。
- (e) デシケーターに貯蔵する。

(2) 蒸着前の準備

- (a) NaCl 100mg を るつぼで細かくし、アルミニウム箔で包み、200°C ホットプレート上で30分間ベークする。
- (b) 蒸着装置²⁾のベルジャー内を清浄化する。特にガラス・スライド支持棒と電極についている炭素粉をよく取り除いておく。(水冷式 SUS ベルジャーの内径は55cm, 高さ78cmである。)
- (c) ガラス・スライド5枚ずつを支持棒にセットする。3mm ϕ ×25mmの炭素棒(陽極と陰極)を炭素電極ベースに差し込む。0.1mm厚さ、28mm巾、50mm長さのモリブデン板を用いて浅いポートを作り、剥離材用ポートの電極位置にセットする。

* 色なしガラス, MATSUNAMI GLASS INDUSTRIES, LTD, R3703 1st Grade

- (d) モリブデンボート上に NaCl 100mg をのせる。
- (e) ベルジャを真空排気し、ガラス・スライドを 105℃ まで加熱する。約 1 時間の間にベルジャー内の真空度は $(1 \sim 5) \times 10^{-6}$ Torr に到達する。(油拡散ポンプには、液体窒素を充填する)。

(3) 蒸着時のパラメータ

(a) NaCl 蒸着に対するパラメータ

厚さ： $(6 \sim 8) \mu\text{g}/\text{cm}^2$
 蒸着速度： $0.08 \mu\text{g}/\text{cm}^2 \cdot \text{sec}$
 蒸発源： 100mg
 電流： $(49 \sim 51) \text{ A}$
 真空度： $(1 \sim 5) \times 10^{-6}$ Torr

(b) 炭素蒸着に対するパラメータ

厚さ： $13 \mu\text{g}/\text{cm}^2$
 蒸着速度： $(0.1 \sim 0.2) \mu\text{g}/\text{cm}^2 \cdot \text{sec}$
 蒸着時間： $(50 \sim 100) \text{ sec}$
 アーク電流： 35 A
 アークの点火： $(2 \sim 6)$ 回
 真空度： 1×10^{-5} Torr

(4) 蒸着後のパラメータ

ガラス・スライドの温度を 50℃ 位までに冷却する。その後ガラス・スライドを取出す。

この処方により調製した炭素膜は 10mm ϕ の穴を有する SUS ホルダー (化学エッチング法により日本フィルコン KK ミクロ製品部で製作されたもの) 上に、水面でマウントするが収率は約 70% であり、調製法の再現性は極めてよい。 $50 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ 位の炭素膜調製の際には太目の炭素棒 6mm ϕ \times 30 mm を用いる。

2.2 アルミニウム膜バックニング

アルミニウム膜 $(30 \sim 100) \mu\text{g}/\text{cm}^2$ バックニング調製の処方を以下に記す。使用した真空蒸着装置は小型蒸着装置 (日本真空技術 KK, EBH-6) である。

(1) ガラス・スライドの洗浄法

炭素膜調製の場合と同様である。

(2) 蒸着前の準備

- (a) 剥離剤用ボートは 0.1mm 厚さ、8mm 巾、10 cm 長さのモリブデンを用いて作成する。試料がこぼれないように、8mm 巾の両側を 1mm ばかり持上げておく。
- (b) アルミニウム用ヒータとしては、0.7 mm ϕ のタングステン線 15 cm を 2 本撚り合せて W 型として用いる。片側を万力で固定して撚り合せるとうまく出来る。
- (c) モリブデンボートおよびタングステンヒータは $\sim 5 \times 10^{-6}$ Torr の真空度、50 A/2min の条件でベークしておく。

(d) 剥離剤としてはNaClまたはCsIを用いる。NaClの場合には炭素膜調製の場合と同時にボートにのせる前にベークすることがのぞましい。

(e) アルミニウム試料は100 μ m厚さのアルミニウムシート(純度: 99.999%)から5 mm巾, 20 cm長さのもの(600mg)を切り取って, タングステンヒーターに巻き付ける。

(f) ガラス・スライド4枚を支持枠にセットする。ガラス・スライドと蒸発源との距離は10~15 cmで行う。

(3) 蒸着時のパラメータ

(a) NaCl 蒸着に対するパラメータ

厚さ: 20 μ g/cm²

蒸着速度: 0.02 μ g/cm² · sec

蒸発源: 100 mg

電流値: (25 ~ 30) A

真空度: (1 ~ 5) $\times 10^{-6}$ Torr

(a') CsI 蒸着に対するパラメータ

厚さ: 50 μ g/cm²

蒸着速度: 0.04 μ g/cm² · sec

蒸発源: 100 mg

電流値: (20 ~ 25) A

真空度: (1 ~ 5) $\times 10^{-6}$ Torr

(a'') TEEPOL を塗布したガラス・スライドを用いてもよい。(銅膜バックング調製の項参照)。

(b) アルミニウム蒸着に対するパラメータ

厚さ: (30 ~ 100) μ g/cm²

蒸着速度: 0.05 μ g/cm² · sec

蒸発源: 600 mg

電流値: (25 ~ 40) A

真空度: (1 ~ 5) $\times 10^{-6}$ Torr

(4) 蒸着後のパラメータ

(15~30)分冷却の後, 窒素又は空気パージにより取り出し, その後すぐに所望のサイズに蒸着膜をカッターで切り, 水面に浮べ枠上にとる。収率はいずれの剥離剤を用いても約100%である。

2.3 ニッケル膜バックング

ニッケル膜(70~100) μ g/cm² のバックング調製の処方書を以下に記す。使用した真空蒸着装置は小型蒸着装置である。ニッケル薄膜調製用の剥離剤としてはNaCl, BaCl₂, NiCl₂, CsI, TEEPOLを用いてテストを行った結果, 薄膜調製に適しているのはCsI だけであった。

(1) ガラス・スライドの洗浄法

炭素膜調製の場合と同様である。

(2) 蒸着前の準備

- (a) 剥離剤用ボートは0.1mm厚さ、8mm巾、10cm長さのモリブデンを用いて作る。試料がこぼれないように8mm巾の両側を1mmばかり持上げておく。
- (b) ニッケル用ヒーターとしては、0.7mmφのタングステン線15cmを2本撚り合せてW型として用いる。片側を万力で固定して撚り合せるとうまく出来る。
- (c) モリブデンボートおよびタングステンヒーターは $\sim 5 \times 10^{-6}$ Torrの真空度、60A/2minの条件でベークしておく。
- (d) 剥離剤としてはCsIを用いる。
- (e) ニッケル試料は0.5mmφニッケル線〔原研倉庫品、分析値(Ni:99.5%, Fe:0.20%, Mn:0.19%, Si:0.06%, C:0.03%, S:0%)〕15~20cmをタングステンヒーターに巻き付ける。局部的に多重に巻きすぎるとタングステン線と合金を作りヒーターが切れるので要注意である。
- (f) ガラス・スライド4枚を支持枠にセットする。ガラス・スライドと蒸発源との距離は15cmである。

(3) 蒸着時のパラメータ

(a) CsI蒸着に対するパラメータ

- 厚さ：(50~100) $\mu\text{g}/\text{cm}^2$
- 蒸着速度：(0.05~0.1) $\mu\text{g}/\text{cm}^2 \cdot \text{sec}$
- 蒸発源 (100~200)mg
- 電流値：(20~25)A
- 真空度： 2×10^{-6} Torr

(b) ニッケル蒸着に対するパラメータ

- 厚さ (70~100) $\mu\text{g}/\text{cm}^2$
- 蒸着速度：(0.05~0.1) $\mu\text{g}/\text{cm}^2 \cdot \text{sec}$
- 蒸発源：0.5mmφ×15cm
- 電流値：(35~42)A
- 真空度： 2×10^{-6} Torr

(4) 蒸着後のパラメータ

(15~30)分冷却後、空気バージにより取り出し、3時間以上放置してから、所望のサイズに蒸着膜をカッターで切り、30℃の水面に浮べて枠上にとる。収率は定りにくいだが50%以下であった。将来、基板加熱機構を附加して収率を向上させることがのぞましい。

2.4 銅膜バックキング

銅膜(100~200) $\mu\text{g}/\text{cm}^2$ のバックキング調製の処方を以下に記す。使用した真空蒸着装置は小型蒸着装置である。銅薄膜調製用の剥離剤としてはNaCl, BaCl₂, 白砂糖などを用いてテストを行った。いずれの場合も厚さ50 $\mu\text{g}/\text{cm}^2$ 位の剥離剤、100 $\mu\text{g}/\text{cm}^2$ の銅蒸着を行い薄膜調製

を行ったが、水面に浮上した時にばらばらに切れたり、また、きれいに浮上し枠に取上げることが出来ても膜がもろく、水分の乾燥と共に破れてしまった。さらにCl化合物を用いた場合には、 CuCl_2 になり黄色に腐食された。白砂糖を用いて何とか銅の腐食のない薄膜を調製することが出来たがクラックの入り易い膜となった。

最終的にはTEEPOL (Super TEEPOL又はHB-6, KK ニッポンティーポール製, 高級アルコール系中性洗剤)の水溶液を作り, 良質の銅薄膜 ($100 \sim 200$) $\mu\text{g}/\text{cm}^2$ のものを調製することが出来た。この処方方を以下に記す。

(1) ガラス・スライドの洗浄法

炭素膜調製の場合と同様である。

(2) 蒸着前の準備

(a) Super TEEPOL 8%溶液を作る。HB-6の時は4%溶液とする。水道水にはClイオンが入っているので必ず蒸留水を用いて水溶液を作る。溶液にはガラス・スライド洗浄用棒(テフロン製)と共に浸し、水面の泡を取去ってから静かに引き上げる。HB-6の時はガラス・スライド間を充分にあけておく方が液がきれいにきれる。80℃のオーブンに入れてよく乾燥してからもう一度同様にして溶液に浸し、引上げ、そしてオーブンで乾燥させる。HB-6の時は1回の浸しでもよい。液をきる方向はガラス・スライドの短い側で行う方がよい。

(b) 銅試料用ヒーターとしては0.1mm厚さ, 4mm巾, 10cm長さのモリブデンを用いてV字型のものを作る。巾を狭くした理由はTEEPOLに興える輻射熱を出来るだけ防ぐためである。モリブデンポットは60A/2minの条件で白やきをしておく。

(c) 蒸発源としては約200メッシュ位の銅の粉末を用いた。純度は99.85%(S: 0.005%, As: 0.001%, Fe: 0.005%, Sn+Sb: 0.010%, Pb: 0.005%)である。

(d) Super TEEPOL又はHB-6を塗布したガラス・スライド4枚を支持棒にセットする。ガラス・スライドと蒸発源との距離は17cmであった。

(3) 蒸着時のパラメータ

(a) ガラス・スライドに塗布したSuper TEEPOL又はHB-6は80℃のオーブン中でよく乾燥させ、さらにベルジャー中にマウントしてからはTEEPOLからのガス出しを充分に行なう。

約2時間位よく排気し、液体窒素トラップを使用した状態で 5×10^{-7} Torr位の真空度にするのがのぞましい。

(b) 銅蒸着時のパラメータ

厚さ: $(100 \sim 200) \mu\text{g}/\text{cm}^2$

蒸着速度: $(0.03 \sim 0.05) \mu\text{g}/\text{cm}^2 \cdot \text{sec}$

蒸発源: 200mg

電流値: $(23 \sim 26) \text{A}$

真空度: 1×10^{-6} Torr

3. 真空蒸着法による重イオン用ターゲットの調製

2章では真空蒸着法によるC, Al, Ni, Cuのバックング調製に対する処方について記した。これらのバックング膜上に所望のターゲットを真空蒸着法により調製することが出来る。また、バックングと同様にセルフサポートのターゲットを調製しうるものもある。実際に調製したものの処方中2~3の特種なものについての処方を以下に記す。

3.1 炭素バックング膜上へニッケル濃縮同位元素薄膜の調整

(1) 炭素バックング膜の調製法は2.1参照

(2) 蒸着前の準備

(a) 蒸発源ニッケルメタル試料

ニッケル濃縮同位元素の試料はOak Ridge National Laboratoryから購入したが、その試料はマスセパレータのコレクターに集められたものの一部であり、形状は熔融メタル状の塊であった。このままではニッケル蒸発源としては用いられないので、先づ小割にしこれらを酸化・還元のプロセスを経て、新鮮な金属面を有する微粒粉末に変換した。この過程では試料の損失を最小にし、さらに天然ニッケルの混入が絶対ないように注意した。試料の回収率は99%であった。この処理法の詳細は参考文献3)に記す。

(b) 蒸発源ヒータとしてはタングステンボート、0.1mm厚さ、8mm巾、長さ10cmを用いる。 1×10^{-6} Torrの真空度で60 A/2 minの条件で白やきを行う。

(c) 炭素バックング膜と蒸発源ヒータとの距離を6 cmにセットする。濃縮同位元素試料の入手量の関係で距離は出来る限り近くした。

(3) ニッケル蒸着に対するパラメータ

厚さ：(50 ~ 100) $\mu\text{g}/\text{cm}^2$

蒸着速度：(0.07 ~ 0.14) $\mu\text{g}/\text{cm}^2 \cdot \text{sec}$

蒸発源：20mg

電流値：(40 ~ 50) A

真空度： 2×10^{-6} Torr

(4) 蒸着後のパラメータ

蒸着終了後は約1時間真空度 2×10^{-6} Torr以下に保ち、その後乾燥窒素ガスでベルジャを徐々にパーズする。ニッケル蒸着した炭素バックング膜が破れないように観察していなければならない。

3.2 酸化シリコン (SiO_2) 薄膜の調製

(1) ガラス・スライド1"×3"はソーダガラス(PALE GREEN, MATSUNAMI GLASS)

INDUSTRIES LTD)の古い風化面をもつものを使用する。ガラス・スライドの表面は指の脂肪をつけないようにしてカーゼで軽くごみを拂う。ガーゼとしてはベンコット(旭化成製, コットン, ノーバインダー特殊ガーゼ)がもっとも良い。

がもっとも良い。

(2) 蒸着前の準備

(a) 蒸発源はSiOを用い、ヒータとしてはボート2組を用いる。ボートはタンタル0.1mm厚さ、8mm巾、10cm長さのものを用いる。 1×10^{-6} Torrの真空度、60A/2minの条件で白やきを行う。

(b) ガラス・スライドと蒸発源ヒータとの距離を9cmにセットする。

(3) SiO蒸着に対するパラメータ

厚さ: $80 \mu\text{g}/\text{cm}^2$

蒸着速度: $(0.01 \sim 0.02) \mu\text{g}/\text{cm}^2 \cdot \text{sec}$

蒸発源: $60 \text{mg} \times 2$

電流値: $(40 \sim 50) \text{A}$

真空度: 2×10^{-6} Torr

(4) 蒸着後の処理

蒸着されたSiO薄膜は大気中でSiO₂薄膜になるものと思われる。風化表面をもつソーダガラス上に附着したSiO₂の膜厚は膜厚計の読みでは $80 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ であり、膜面の干渉色は($0.7 \mu\text{m} \sim 1.2 \mu\text{m}$)に相当する色であった。 $1.2 \mu\text{m}$ 近辺は赤・緑、 $0.7 \mu\text{m}$ 近辺は深紅の赤、濃青であった。大気中に出したソーダガラス板上のSiO₂膜は20℃、飽和水蒸気の容器に入れ、表面の蒸着層が剥離される頃を見計って水面上でSiO₂膜を浮上させ、棒にすくい上げる。ソーダガラスの表面一層(多分 $200 \text{Å} \sim 1000 \text{Å}$)がSiO₂膜を支持しているように観測された。上記処方は風化面を持つソーダガラス・スライドに特有のものである。

4. 重イオンスパッタ法による重イオン用ターゲットの調製

2章では真空蒸着法によるC, Al, Ni, Cuのバックング調製に対する処方について記した。これらのバックング上に、所望のターゲットを重イオンスパッタ法により調製することが出来る。また同方法によりセルフサポートのターゲットを調製しうるものもある。実際に調製したターゲットの処方を以下に記す。

重イオンスパッタ装置はデンマークのDANFYS IK社から1978年購入したものであり設計はG. SlettenとP. Knudsenによりなされた⁴⁾。この装置は当初Arビームによるスパッタ装置であったが、1984年10月Krビームによるスパッタ装置に変換を行った。ガス系の変換と共に装置全体のオーバーホールを行い、また膜厚計(日本真空KK製CRTM型)を附加した。

INDUSTRIES LTD)の古い風化面をもつものを使用する。ガラス・スライドの表面は指の脂肪をつけないようにしてカーゼで軽くごみを拂う。ガーゼとしてはベンコット(旭化成製, コットン, ノーバインダー特殊ガーゼ)がもっとも良い。

がもっとも良い。

(2) 蒸着前の準備

(a) 蒸発源はSiOを用い、ヒータとしてはボート2組を用いる。ボートはタンタル0.1mm厚さ、8mm巾、10cm長さのものを用いる。 1×10^{-6} Torrの真空度、60A/2minの条件で白やきを行う。

(b) ガラス・スライドと蒸発源ヒータとの距離を9cmにセットする。

(3) SiO蒸着に対するパラメータ

厚さ: $80 \mu\text{g}/\text{cm}^2$

蒸着速度: $(0.01 \sim 0.02) \mu\text{g}/\text{cm}^2 \cdot \text{sec}$

蒸発源: $60 \text{mg} \times 2$

電流値: $(40 \sim 50) \text{A}$

真空度: 2×10^{-6} Torr

(4) 蒸着後の処理

蒸着されたSiO薄膜は大気中でSiO₂薄膜になるものと思われる。風化表面をもつソーダガラス上に附着したSiO₂の膜厚は膜厚計の読みでは $80 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ であり、膜面の干渉色は($0.7 \mu\text{m} \sim 1.2 \mu\text{m}$)に相当する色であった。 $1.2 \mu\text{m}$ 近辺は赤・緑、 $0.7 \mu\text{m}$ 近辺は深紅の赤、濃青であった。大気中に出したソーダガラス板上のSiO₂膜は20℃、飽和水蒸気の容器に入れ、表面の蒸着層が剥離される頃を見計って水面上でSiO₂膜を浮上させ、棒にすくい上げる。ソーダガラスの表面一層(多分 $200 \text{Å} \sim 1000 \text{Å}$)がSiO₂膜を支持しているように観測された。上記処方風化面を持つソーダガラス・スライドに特有のものである。

4. 重イオンスパッタ法による重イオン用ターゲットの調製

2章では真空蒸着法によるC, Al, Ni, Cuのバックング調製に対する処方について記した。これらのバックング上に、所望のターゲットを重イオンスパッタ法により調製することが出来る。また同方法によりセルフサポートのターゲットを調製しうるものもある。実際に調製したターゲットの処方を以下に記す。

重イオンスパッタ装置はデンマークのDANFYS IK社から1978年購入したものであり設計はG. SlettenとP. Knudsenによりなされた⁴⁾。この装置は当初Arビームによるスパッタ装置であったが、1984年10月Krビームによるスパッタ装置に変換を行った。ガス系の変換と共に装置全体のオーバーホールを行い、また膜厚計(日本真空KK製CRTM型)を附加した。

4.1 重イオンスパッタ装置の操作手順

図1には重イオンスパッタ装置の操作盤を示す。

(1) Diffusion Pump 始動

- (a) 冷却水のバルブ（往・帰）を開にし膜厚計へのバルブを開にしてから配電盤の“スパッタユニット電源”と“水ポンプ電源”およびベビコンのスイッチをONにする。
- (b) 装置の左ラック下段左のMain Power スwitchをONにする。
- (c) [COOLING WATER] (赤, 左側) を数秒間押し続けて冷却水を流す。冷却水が流れると指を離してもそのまま赤ランプが点燈している。
- (d) [BACKING PUMP] (赤, 左側) を押してRotary Pumpを起動する。この時 Pump の head はベルジャに直接つながって荒引の状態にある。
- (e) [BACKING P. VALVE] (赤, 左側) を押してDiffusion Pumpを排気する。
- (f) Pirani Gauge の head 1 において約 5×10^{-2} mbar になった時 [DIFF. PUMP] (赤, 左) を押してDiffusion Pumpを起動する。
- (g) 約20分間Diffusion Pumpが立ち上がるのを待つ。
- (h) 適当な時にイオン源内（ベルジャ内）が真空であることを確認してAnode電源を入れ、Anode 1, Anode 2 に正常に電圧がかかることを確認する（図2参照）。Anode 1 には 100 V, Anode 2 には 200 V がかかる。もしこれらの電圧がかからない時には Intermediate Electrode と Aperture の間（図3参照）にスパッタされたフィラメントのかすがつまっているため、先づ、このかすを掃除しなければならない（手順(2), (3)を参照）。

(2) ベルジャ開

- (a) [DIFF. P. VALVE] (緑, 右側) が点燈 (Valve Close) していることを確認する。
- (b) [BACKING P. VALVE] (赤, 左側) が点燈しRotary Pump は Diffusion Pump 側を排気していることを確認する。
- (c) 窒素ポンペの本栓を開け、減圧弁を調節して、圧力調節用のポリ袋がほどほどにふくらむようにする。
- (d) [AIR INLET] (赤, 左側) を押してベルジャ内に窒素をリークする。ポリ袋がしぼまないように減圧弁を調節する。
- (e) Pirani Gauge の head 2 で十分に大気圧に近くなったことを確認して [LIFT] (黄) を押しベルジャを引き上げる。動作が急激であるから要注意である。
- (f) 窒素ポンペの本栓を閉じる。
- (g) [AIR INLET] (緑, 右側) を押して Inlet Valve を閉じる。開けておくと電磁弁に電流が流れたままになっている。

(3) イオン源掃除およびフィラメント交換（図3参照）

- (a) Anode, Acceleration, Focus の各電源がOFFになっていることを確認してから、イオン源に接続しているケーブル（フィラメント用2本とAnode 1用1本）およびガス導入管を外す。

- (b) フィラメント部を取外し、交換の必要があればフィラメントを交換する。
 - (c) イオン源内部に附着しているフィラメントのスパッタかすを掃除器などで掃除する。
 - (d) 冷却管は取外さずにイオン源部をベルジャから取外す。ボルトが有機絶縁物であるため、機械的に弱いので要注意である。
 - (e) Intermediate Electrodeの下とAperture部分の間に附着しているフィラメントのスパッタかすを取除く。
 - (f) (d)→(b)→(a)の順序にイオン源を組立てる。絶縁ボルトは軽くしめるだけでよい。
- (4) ベルジャ内セッティング
- 調製しようとするターゲットによってセッティングは異なるので注意事項のみを列記する。
- 注1) 試料をつめたグラフィトコーンと基板および膜厚計までのそれぞれの距離を測定しておく。
- 注2) 放電を避けるために電位の異なる物同志は出来るだけ離しておく。特にアース電位の膜厚計と最高10 kVのテーブル上に載っている基板間の距離には注意を拂うこと。
- 注3) 絶縁物は出来る限り使用しない。
- 注4) ポンプおよびコンプレッサーからの振動により、基板が動いてしまうことがあるので基板はしっかりとテーブルに固定する。
- 注5) 膜厚計のスイッチを入れ正常に作動することを確認する。膜厚計に散乱ビームが入射しないように注意すること。
- 注6) [TARGET ROTATION] (赤) を押し、つまみを回してグラフィトコーンが回転することを確認する。
- (5) ベルジャ閉および排気
- (a) [LIFT] (黄) を押し、ベルジャを手で案内しながら下ろす。
 - (b) [AIR INLET] (緑, 右側) が点燈していることを確認して荒引きを開始する。もし、ベルジャ内に薄膜が入っている時は、先づ、スパッタ装置に附加したRotary Pumpで初期排気を行なう。Pirani Gaugeのhead 2で約1 mbarになったら[BACKING P. VALVE] (緑, 右側) を押し、ベルジャ内の荒引きを行なう。
 - (c) Pirani Gaugeのhead 2で約0.1 mbarになったら[BACKING P. VALVE] (赤, 左側) を押し、Rotary PumpをDiffusion Pumpにつなぐ。
 - (d) [DIFF. P. VALVE] (赤, 左側) を押し、Diffusion Pumpで排気する。
 - (e) 数分後Penning Gaugeをつけて真空度を観測する。
 - (f) ある程度真空が良くなったら、ガス系のBY PASS VALVEを開けてガス系を同時に排気する。
- (6) イオン源作動
- (a) あらかじめ、Krガスポンベの本栓を開けてNEEDLE VALVE手前までKrガスを満しておく。
 - (b) 左ラックの裏扉が閉まっていること(リミットスイッチが押された状態)を確認して各電源(Filament and Anode, 10 kV Acceleration, 5 kV Focus, Current Integrator)のスイッチをONにする。

- (c) 真空が 1×10^{-5} mbar 程度になったら、フィラメント電流を流しガス出しを行なう。電流はフィラメントが新品であれば30 A位であり、古い時は前回のRUNの最終値を参考にし、それよりも少し低めにする。
- (d) 5～10分後、フィラメント電流を約35 Aに増加させる。ただし、フィラメントが新品でない時は前回のRUNの最終値程度にする。
- (e) BY PASS VALVE を閉じる。
- (f) Acceleration 電圧, Focus 電圧を各々約 8 kV, 1 kV 程度印加する。
- 注) 電圧をかける前に、ガスを流しプラズマを立ててイオン源を立ち上げると、あとから電圧がかからないことがある。
- (g) NEEDLE VALVE を少しずつ開けてガスを流す。ダイヤル530が全閉の状態から読みを減じて行くと開になる。約440で真空度が $1.5 \sim 2.0 \times 10^{-5}$ mbar 程度となる。
- (h) 上記の真空度程度でアーク放電が始まる。アークが立ったことは Anode 1 電圧の減少 ($100 \text{ V} \rightarrow$ 約 50 V)、Acceleration 電流の増加およびコーン上のビーム光で確認出来る。
- (i) アークが安定になったら、ガス流量を若干減少させる ($1.0 \sim 1.5 \times 10^{-5}$ mbar)。
- (j) ベルジャ内の有害な放電が生じない程度に Acceleration 電圧を上昇させ (最大10 kV)、Focus 電圧を調節して試料の中央に焦点を結ぶようにする。
- 注1) 試料の正面から見たのでは、フィラメントの直射光のためにスポットが見えにくいので側面から見るとよい。
- 注2) スポットがコーンの回転中心にくるようにベルジャカラム上にある X Y 移動用つまみを回して台を動かす。
- (k) イオン源の各パラメータを記録する。
- (7) ターゲット調製
- (a) イオン源の各パラメータが安定化したら、先づコーンを膜厚計に向けスパッタリング収率 (S) を測定する。膜厚計の読みを t ($\mu\text{g}/\text{cm}^2$) とし Current Integrator の Count 数を I とすると
- $$S = t / I$$
- 注1) Current Integrator の領域は 3 mA フルスケールにセットする。
- 注2) 膜厚計読みは density=1.0 と入力すれば thickness $1 \text{ K } \text{\AA} = 10 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ である。
- 注3) 膜厚計が正常に動作しない現象は (thickness が増えたり減ったりする)、試料からのガス出しが多い時に惹起される放電のためと考えられる。
- 注4) 膜厚計は温度依存性を持つので、測定後ターゲットコーンを逆向に回して冷却してから値を読み取る。
- (b) ターゲットコーンを基板に向けて本番を開始する。Current Integrator を同時にスタートさせる。
- 注) イオン源の状態は刻々変化し、ビームスポットの焦点が変化するので時々 Focus 電圧を調節する。
- (c) 希望する厚さの試料をつけるためには、電荷数をいくらしたらよいかをスパッタリング収率 S により計算する。

- (d) 終了後、再びターゲットコーンを膜厚計に向けて、スパッタリング収率を再測定する。
 - (e) イオン源パラメータの最終値を記録する。
- (8) イオン源停止
- (a) NEEDLE VALVEを全閉にする。この時のダイヤル目盛は530である。このタイプのバルブは閉めすぎないこと。
 - (b) BY PASS VALVEを開ける。
 - (c) Acceleration, Focusの各電圧を下ろす。
 - (d) Filament電流を下ろす。
 - (e) Anode電源（冷却モータの電源と共通）のみONにしておきイオン源が冷却するのを待つ。約30分必要である。
 - (f) 出来上った試料を取出す時は、操作手順(2)に従ってベルジャを開け、再び真空に排気する時は操作手順(5)に従う。
- (9) 装置停止
- (a) [DIFF. P. VALVE] (緑, 右側) を押しベルジャと縁を切る。
 - (b) BY PASS VALVEを閉じる。
 - (c) [DIFF. PUMP] (緑, 右側) を押し, Diffusion PumpのヒータをOFFにする。
 - (d) このままDiffusion Pumpが冷却するまで約20分待つ。
 - (e) [BACKING P. VALVE] (緑, 右側) を押す。
 - (f) [BACKING PUMP] (緑, 右側) を押す。
 - (g) [COOLING WATER] (緑, 右側) を押す。
 - (f) Main Power SwitchをOFFする。
 - (g) 配電盤の“スパッタユニット電源”と“水ポンプ電源”およびベビコンのスイッチをOFFにする。
 - (h) Krガスポンペの本栓を閉じる。
- 注1) 壁側にある三つの装置共用の冷却水のバルブ（往・帰）は通常開にしておく膜厚計へのバルブは閉にしておく。
- 注2) Rotary PumpをOFFした状態では、ベルジャとRotary Pumpが繋がったままになるのでベルジャ内に試料等を放置することは好ましくない。

4.2 ターゲットの厚さ測定

膜厚計による厚さの見積りを他の方法による測定と比較する。

(1) 重量の実測との比較

十分強度のある薄膜を基板にしてターゲットを製作し、その重さを直接測定する。

(a) スパッタリングの条件

試料：シリコン板（厚さ1mm, 15mm ϕ ）

基板：ニッケル膜（厚さ5 μ m, 面積1.5 \times 1.5 cm², 重量9.54mg）を10mm ϕ の穴をあけたマスクでカバーする。

距離：試料と基板間，18 mm，試料と膜厚計間，64 mm

(b) イオン源パラメータ

各パラメータの初期値と最終値を記す。

集束電圧：(0.50 ~ 1.45) kV

集束電流：(0.17 ~ 0.52) mA

加速電圧：(10~10) kV

加速電流：(0.40 ~ 0.86) mA

フィラメント電流：(36 ~ 28) A

ビーム電流：(0.30 ~ 0.77) mA

真空度：(1.7 ~ 1.1) $\times 10^{-5}$ mbar

(c) スパッタリング収率

初期： $2.79 \times 10^{-2} \mu\text{g}/\text{cm}^2 \text{ count}$

最終： $2.22 \times 10^{-2} \mu\text{g}/\text{cm}^2 \text{ count}$

但し 1 count = 3×10^{-3} Coulomb

(d) 厚さ見積り

重量実測：(Ni膜+Si；9.91 mg) - (Ni膜；9.54 mg)

$$= 0.37 \text{ mg} / 10 \text{ mm } \phi \cong 470 \mu\text{g}/\text{cm}^2$$

膜厚測定：〔平均スパッタリング収率：($2.51 \times 10^{-2} \mu\text{g}/\text{cm}^2 \cdot \text{count}$)〕 \times 〔総電荷：

$$1512.8 \text{ count} \text{〕} \times \text{〔距離の補正：}(64/18)^2 \text{〕}$$

$$\cong 480 \mu\text{g}/\text{cm}^2$$

以上のように、両者の値は良く一致しており、膜厚計による厚さの見積りがかなり精度良くできることがわかる。ただし、スパッタリングは強い方向依存性を持つため、ターゲット製作時に同時モニターとして膜厚計を使用することは困難である。したがって上記のようにあらかじめスパッタリング収率を測定しておき、ビーム電流の積算値で規格化するのがよい。また、(4.4)で述べるように、放電のために膜厚計が動作不安定となったりビーム電流値が信用できない場合には、厚さの見積りはできない。

(2) 重イオン弾性散乱による見積りとの比較

(a) スパッタリングの条件

試料：シリコン板 (厚さ4 mm, 15mm ϕ)

基板：ニッケル膜 (厚さ70 $\mu\text{g}/\text{cm}^2$, 2.3参照)

距離：試料と基板間18mm, 試料と膜厚計間64mm

(b) イオン源パラメータ

パラメータの初期値と最終値を記す。

集束電圧：(0.45 ~ 0.55) kV

集束電流：(0.14 ~ 0.18) mA

加速電圧：(10~10) kV

加速電流：(0.42 ~ 0.62) mA

フィラメント電流：(36~32) A

ビーム電流：(0.32 ~ 0.52) mA

真空度：(9.0 ~ 7.5) × 10⁻⁶ mbar

(c) スパッタリング収率

初期：2.24 × 10⁻² μg/cm² · count

最終：2.09 × 10⁻² μg/cm² · count

(d) 厚さ見積り

原研タンデム加速器からの130.4 MeV ¹⁶O ビームを製作したターゲットに照射し、弾性散乱をシリコン半導体検出器により測定した。そして、得られた単位ビーム量あたりのカウント数から、ターゲット中のシリコンの量を見積った。その際、ビーム電流の積算値についての補正を¹⁹⁷Auターゲットからの弾性散乱(ラザフォード断面積を仮定)を測定することにより行なった。また、²⁸Si + ¹⁶O系の弾性散乱の断面積は、E 18ポテンシャル⁵⁾を用いた光学模型の計算により求めた。その結果、ターゲット中のSiの量は約130 μg/cm²となった。

一方、膜厚計による見積りでは200 μg/cm²であった。ビーム電流の補正や光学模型による断面積の見積りの不確定さを考慮すると、両者はほぼ良い一致を示していると思われる。

4.3 試料ペレットの製作

粉末試料を油圧プレス装置で固めてペレットを作る。実例として7 mm φ × 3 mmの円柱状に作られた試料ペレットの荷重 (ton/cm²)と出来ばえを記す。

酸化アルミニウム：(2 ~ 3) ton/cm², もろい

酸化サマリウム : 1 ton/cm², ややもろい

ニッケル : 2 ton/cm², 丈夫

酸化物はプレスして固めただけではくずれ易いので、電気炉(約1300℃)中で約10時間焼き固めた。ペレットの直径は治具を交換することにより変えることが出来る。装置は研究4棟、燃料化学日夏幸雄氏の御好意により使用させてもらった。

4.4 ターゲット調製の実例

これまでに製作を試みたターゲットの実例をまとめて表1に示す。なお、表中のビーム電流及びスパッタリング収率は初期値と最終値を平均したものである。また、スパッタリング収率は全て試料から65 mmの距離にある膜厚計により測定したものである。

表からわかるように酸化物を固めて作った試料の場合は放電により膜厚計の動作が不安定になる。放電が試料内部からのガス出しにより生じるとすると、試料の作り方を工夫することにより放電を減らすことも可能であると思われる。

セルフサポートターゲットを作製するには基板から剥離することが必要になるが、今までのところNo. 7の一例のみ成切している。スパッタリングの場合は真空蒸着に比べてデポジット

する分子の運動量が大きいため、基板の中に埋もれてしまうのではないかと考えられる。したがって真空蒸着の場合に有効であった剥離方法がうまく行かないことが多い。No. 7の例は、CsI層と酸化サマリウム層を厚くすることによってガラス基板から分離した酸化サマリウム層を形成させようとしたものである。

参 考 文 献

- 1) S. Takeuchi, C. Kobayashi, Y. Satoh, T. Yoshida, E. Takekoshi and M. Maruyama : Nucl. Instrum. Methods 158 (1979) 333
S. Takeuchi and E. Takekoshi : JAERI-M 9322 (1981)
- 2) S. Takeuchi and S. Kanazawa : Nucl. Instrum. Methods 197 (1982) 267
- 3) 竹腰英子, 杉山康治, 渡部和男 : 原子核研究 27 (1984) 159
- 4) G. Sletten and P. Knudsen : Nucl. Instrum. Methods 102 (1972) 459
- 5) J. G. Cramer et al. : Phys. Rev. C 14 (1976) 2158

する分子の運動量が大きいため、基板の中に埋もれてしまうのではないかと考えられる。したがって真空蒸着の場合に有効であった剥離方法がうまく行かないことが多い。No. 7の例は、CsI層と酸化サマリウム層を厚くすることによってガラス基板から分離した酸化サマリウム層を形成させようとしたものである。

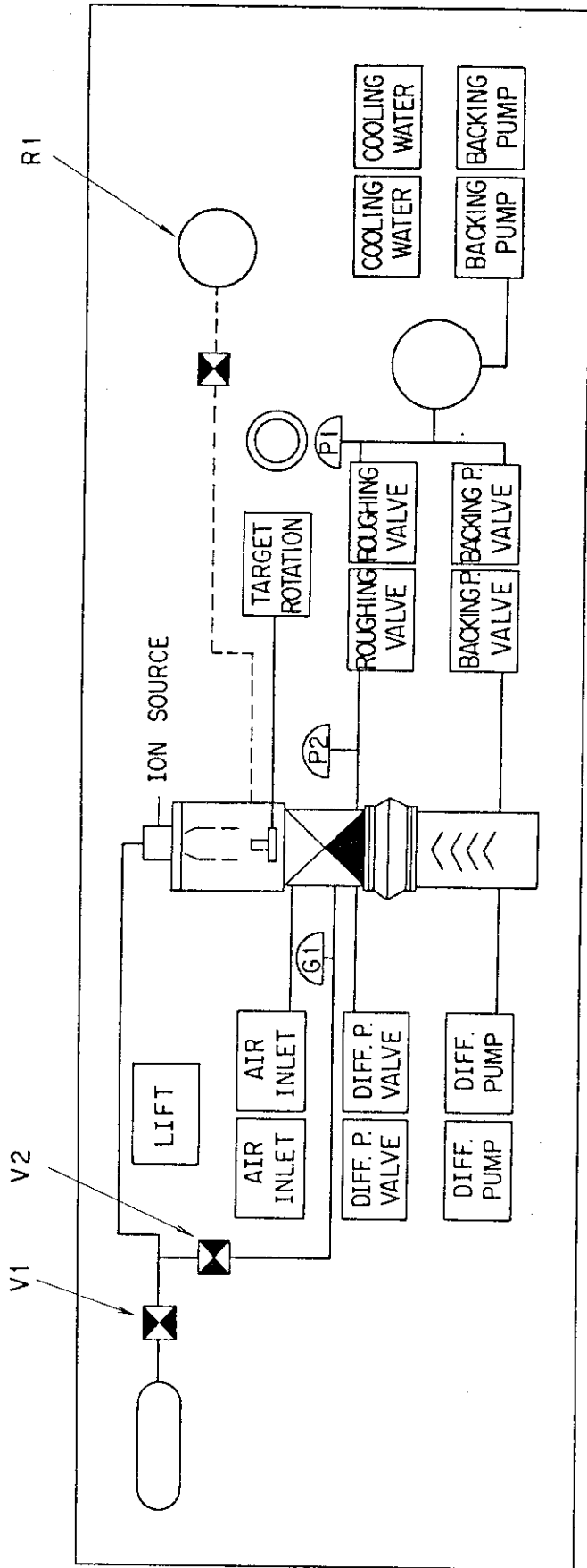
参 考 文 献

- 1) S. Takeuchi, C. Kobayashi, Y. Satoh, T. Yoshida, E. Takekoshi and M. Maruyama : Nucl. Instrum. Methods 158 (1979) 333
S. Takeuchi and E. Takekoshi : JAERI-M 9322 (1981)
- 2) S. Takeuchi and S. Kanazawa : Nucl. Instrum. Methods 197 (1982) 267
- 3) 竹腰英子, 杉山康治, 渡部和男 : 原子核研究 27 (1984) 159
- 4) G. Sletten and P. Knudsen : Nucl. Instrum. Methods 102 (1972) 459
- 5) J. G. Cramer et al. : Phys. Rev. C 14 (1976) 2158

表1 重イオンスパッタリング法によるターゲット調製の実例

No.	試料	基板 ($\mu\text{g}/\text{cm}^2$)	Vacc (kV)	Ibeam (mA)	スパッタリング 収率 ($\mu\text{g}/\text{cm}^2 \cdot \text{count}$)	厚さ ($\mu\text{g}/\text{cm}^2$)	膜厚計 の動作	出来ばえ
1	酸化アルミニウム (4.3 参照)	ソーダガラス (3.2 参照)	9.0	0.6	-	-	不安定	剥離不能
2	シリコン (15mm ϕ , 4mm t)	ニッケル膜 (70) (2.3 参照)	10.0	0.4	2.2×10^{-2}	200	安定	良好
3	シリコン (15mm ϕ , 4mm t)	炭素膜 (13) (2.1 参照)	9.0	0.4	2.4×10^{-2}	90	安定	良好
4	酸化サマリウム (4.3 参照)	炭素膜 (13)	9.0	0.5	-	-	不安定	炭素膜 破れる
5	酸化サマリウム	アルミニウム 膜 (24) (2.2 参照)	9.0	0.8	-	0.3 μm (干渉色)	不安定	良好
6	酸化サマリウム	ティーポール を塗布したガ ラススライド (2.4 参照)	9.0	0.3	-	-	不安定	剥離不能
7	酸化サマリウム	CsI (300)を 蒸着したガ ラススライド (2.2 参照)	9.0	0.9	-	-	不安定	きれいに 剥離でき る
8	銅 (7mm ϕ , 4mm t)	-	8.4	1.0	4.0×10^{-2}	-	安定	-

*) No. 1, 6, 7 はセルフサポートターゲットの調製を目的としている。



P 1 : Pirani gauge head 1

P 2 : Pirani gauge head 2

G 1 : Penning gauge

V 1 : Needle valve

V 2 : By pass valve

R 1 : Pre-roughing rotary pump

図1 重イオンスパス装置の操作盤

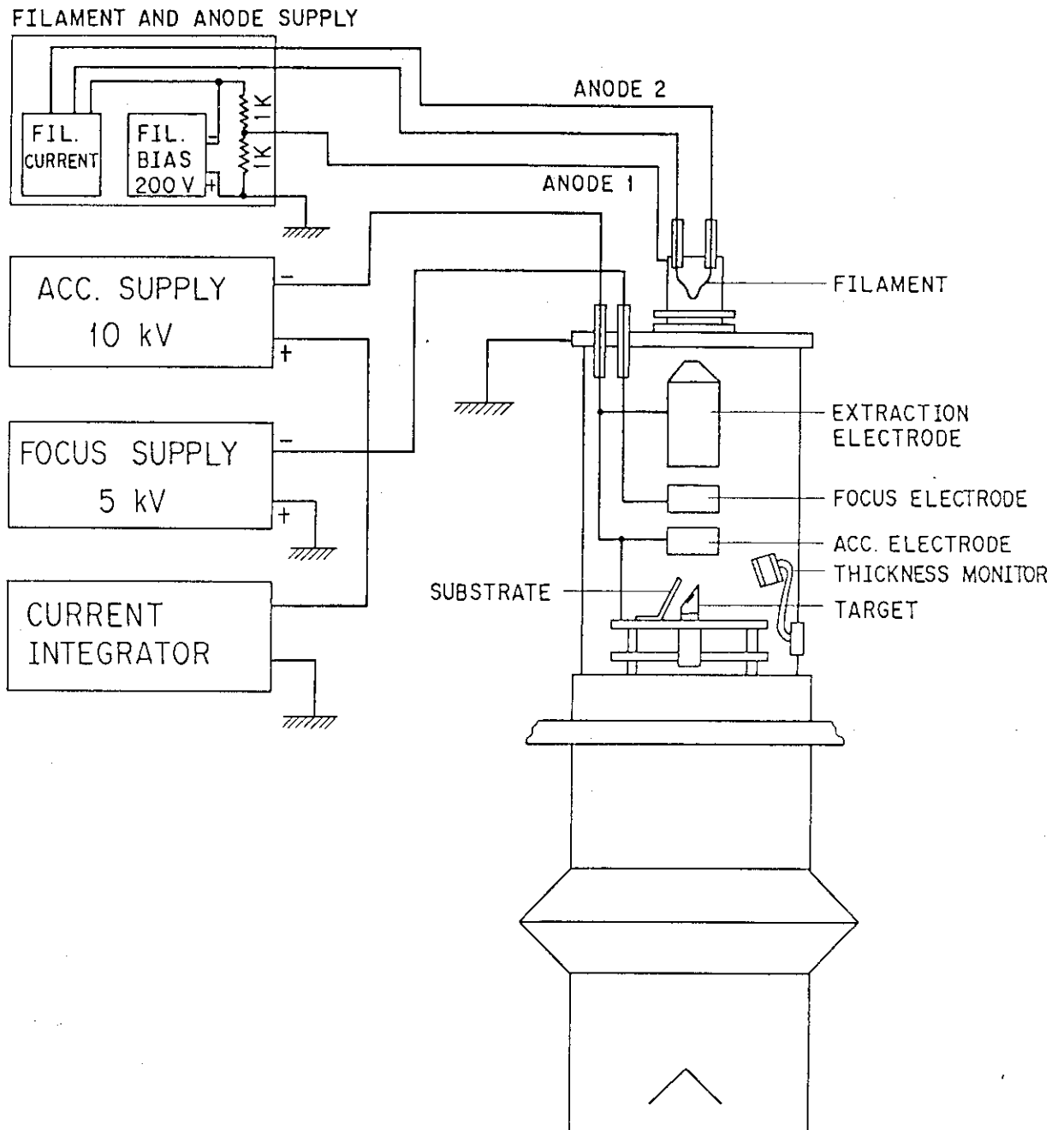


図2 重イオンスパッタリング装置の概略図

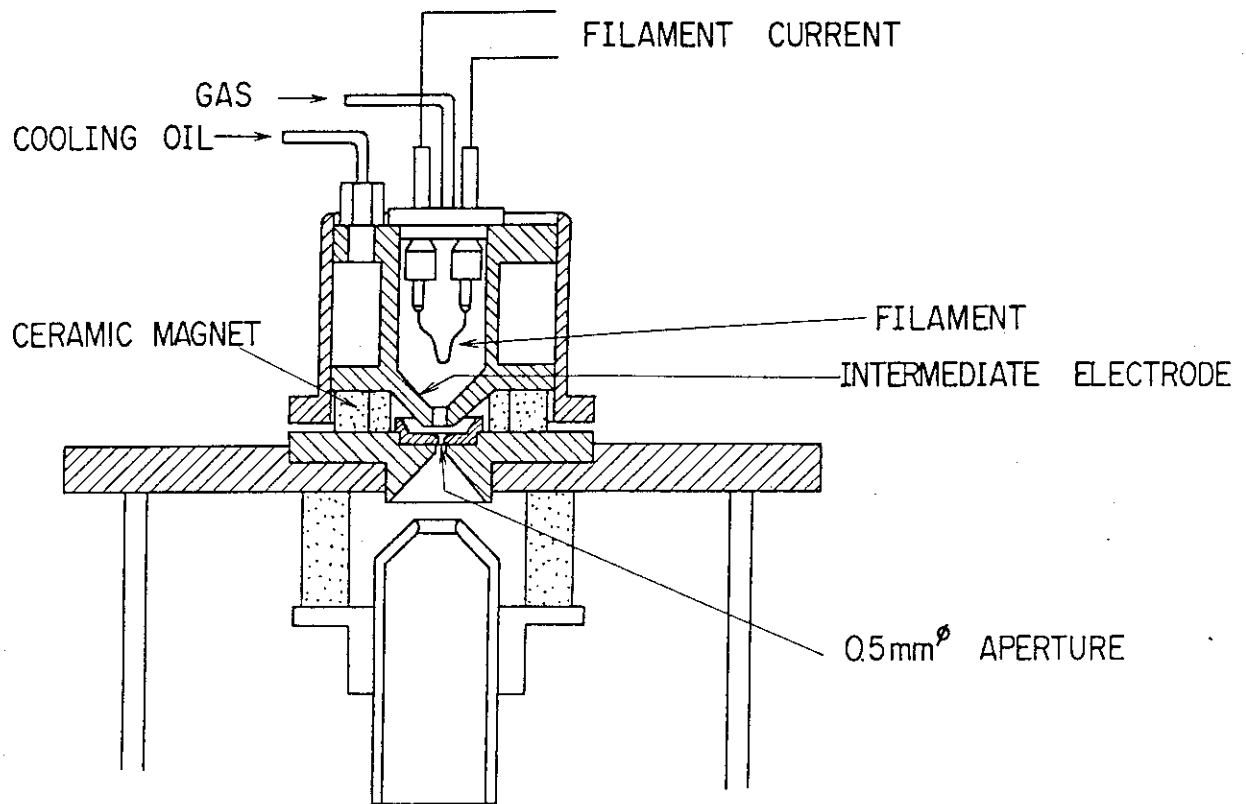


図3 重イオンスパッタリング装置のイオン源断面図