

レーザアブレーション成膜装置とその応用

キーワード：レーザアブレーション、酸化物薄膜、エピタキシャル成長、ラジカル源

概要

レーザ光を固体に照射した場合、レーザ光の照射強度がある大きさ（しきい値）以上になると、レーザ光の持つエネルギーが固体表面で電子、熱的、光化学的および力学（機械）的エネルギーに変換され、その結果中性原子、分子、正負のイオン、ラジカルなどが爆発的に放出され、固体の表面が放散されます。この現象をレーザアブレーションと呼び、微細加工 薄膜形成 元素分析などへ応用されています。特に 薄膜形成に関しては、パルスレーザアブレーション(Pulsed Laser Ablation : PLA)あるいはパルスレーザディポジション(Pulsed Laser Deposition : PLD)と呼ばれ、次のような特徴を有しています。

- a) 広範囲なガスの種類や雰囲気圧のもとで成膜できる。
- b) ターゲット組成とできあがった膜組成のずれが少ない。
- c) 光化学的に励起された化学種（例えば、酸素ラジカル）を成膜に利用できる。
- d) 成膜装置内部の構造が比較的簡単で、レーザ光はターゲットのみ照射するので薄膜への不純物の取り込みが少ない。
- e) 金属や化合物など様々なターゲット材料を使用できる。

このため、主に酸化物系材料の単結晶（エピタキシャル）薄膜作製の有効な方法として、近年急速に普及しています。

ここでは、当研究所に設置されているレーザアブレーション成膜装置（日本真空技術株製）の概要と、実際に本装置で行った薄膜作製の事例について述べます。

レーザアブレーション成膜装置の概要

本装置は、1)レーザ光源を含む光学系、2)

ラジカル源が付いた成膜用チャンバーおよび試料交換用チャンバーから構成されています。主要部分の主なスペックを表1に示します。

表1 レーザアブレーション成膜装置の主要部分のスペック

1) レーザ光源

光源	KrF($\lambda=248\text{nm}$)
出力エネルギー(mJ)	350(max.)
繰り返し周波数(Hz)	1~20

2) 成膜チャンバー

到達真空度(Pa)	$\leq 1.3 \times 10^{-5}$
酸素圧(Pa)	$3.0 \times 10^{-3} \sim 1.3 \times 10^2$
基板温度($^{\circ}\text{C}$)	800(max.)
ラジカル源の出力(W)	200(max.)

レーザ光はレンズを用いて、作製雰囲気に設定された成膜用チャンバー内にあるターゲット上に集光され、放出（アブレーション）された粒子がターゲットと対向の位置にある基板の上に堆積し、薄膜が作製されていきます。

事例1 - $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_x$ (YBCO)薄膜 -

1986年の酸化物系高温超伝導体の発見以来、その薄膜合成法としてPLD法は非常に注目され大きく発展してきました。それは、YBCO膜の物性が構成元素の組成比や結晶性に多大な影響を受ける点、そしてYBCOの臨界温度が93Kであるため、液体窒素温度(77K)で動作するデバイスへの応用が可能になる点などの理由によります。

図1(a)に、PLD法でMgO(100)基板上に作製されたYBCO膜のX線回折パターンを、(b)にその膜の電気抵抗の温度依存性の結果を示します。図1(a)より、YBCO膜の(00L)[$L=1 \sim 7$]ピークおよび基板のピーク以外見られないことから、こ

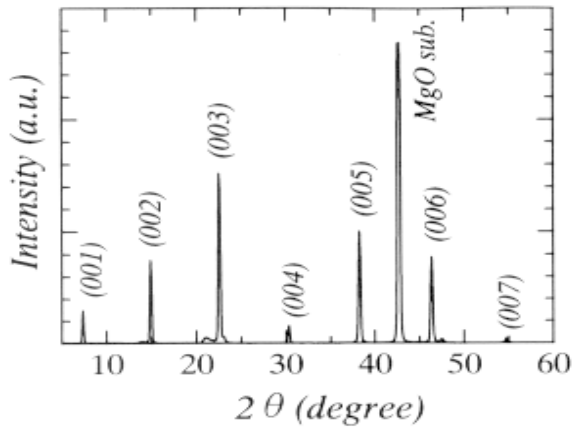


図1 (a) YBCO膜のX線回折パターン

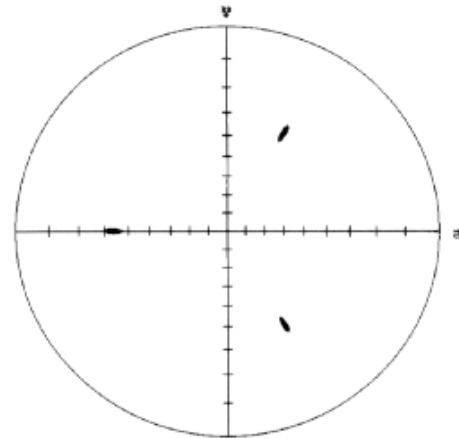


図2 LiNbO₃膜の極点図測定
測定面は{012}

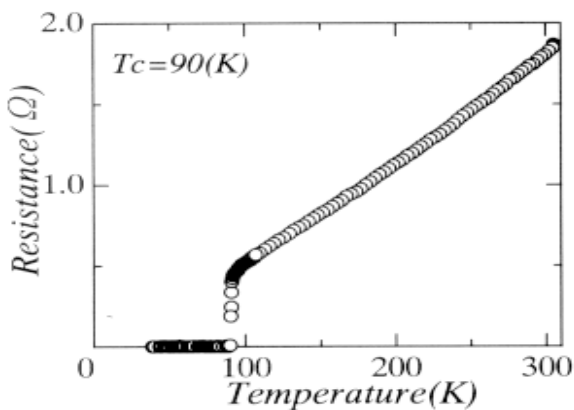


図1 (b) YBCO膜の電気抵抗の温度依存性

の膜はMgO(100)基板にc軸配向していることが分かります。また同図(b)より、電気抵抗は温度の低下とともに減少し、90K近傍にて超伝導転移が起っています。

以上のことから、結晶性および電気的特性に優れたYBCO膜をMgO(100)基板に作製できていることが分かります。

事例2 - LiNbO₃膜 -

LiNbO₃は強誘電体材料で、主として単結晶が光導波路や弾性表面波フィルターなどによく用いられています。この材料は結晶に異方性を有するため、薄膜として利用する場合、結晶方位を制御して成長(エピタキシャル成長)させる必要があります。そのため、ある程度高い基板温度での成膜になります。一方、構成元素の1

つであるLiは非常に揮発性が高い元素のため基板上で再蒸発が起こりやすく、Liが欠損した膜がよくできます。このため、成膜時の基板温度はできるだけ低い方が望ましいと思われます。そこで膜中のLi含有量を維持するために、ターゲット中のLi含有量を少し過剰にするとともに、成膜時にラジカル源により酸素ラジカルを発生させてLiの酸化を促進し、成膜時のLiの再蒸発の抑制を試みました。図2にサファイヤ(001)基板に作製されたLiNbO₃膜の{012}面の極点図測定の結果を示します。図2より、120度間隔で3回対称のスポットが得られていることが分かります。これは膜面内においても高い配向性を有していることを意味しており、通常のX線回折パターンの結果と併せて、サファイヤ(001)基板にLiNbO₃膜がエピタキシャル成長していることが分かります。また、この膜の屈折率($n=632\text{nm}$)が単結晶のそれとほぼ等しいことから、結晶性および光学的特性に優れたLiNbO₃膜をサファイヤ(001)基板に作製できていることが分かります。

まとめ

以上のように、PLD法は非常に高品質な膜を作製するのに有望な成膜方法です。また、レーザー光を利用した光化学反応にも利用できます。