

KEK東海キャンパスにおける パルスレーザー堆積法による薄膜作製装置

上智大学理工学部・足立 匡, 寺嶋 理人

KEKミュオン科学研究系・岡部 博孝, 中村 惇平, 門野 良典

ごく最近、待望のファーストビームが得られたJ-PARC/MUSE、Uラインの超低速ミュオンビームは、薄膜の表面のナノメートル深さの領域や接合界面の磁性を調べることができる新しい量子ビームである。超低速ミュオンスペクトロメーターに薄膜作製装置を併設し、作製した薄膜を大気に暴露させることなく(in-situで)スペクトロメーターに搬送して測定できるようにする計画が立ち上がり、我々は、そのプロジェクトに加わるようになった。ここでは、新たに導入したパルスレーザー堆積(PLD)法による薄膜作製装置について紹介したい。

【薄膜作製装置の構成】

薄膜を作製する方法はいろいろあるが、本プロジェクトではPLD法を採用した。理由は、装置が比較的安価であること、簡便に薄膜を作製できること、様々なタイプの試料(酸化物、金属間化合物他)の薄膜を作製できることである。PLD法は物理的気相堆積法的一种で、固体ターゲット試料にパルスレーザーを照射し、ターゲット成分をアブレーション蒸発させた数十eV程度の粒子により薄膜を形成する。PLD法は大面積の成膜が不得意であるが、組成制御性に優れ、るつぼ材による汚染がないなど多くの利点があるため、薄膜の研究によく利用されている。ターゲットとなる試料が作製できれば、薄膜の作製が可能である。

PLD装置は、KEK東海キャンパス1号館の地下の部屋に設置した。理由は、装置の立ち上げ、様々なパーツのアップグレード、薄膜作製の技術の習得などを、超低速ミュオンビームラインがある放射線管理区域内で行うと効率が悪いからである。数年後にビームラインへの移設を予定しており、それまでは、搬送チェン

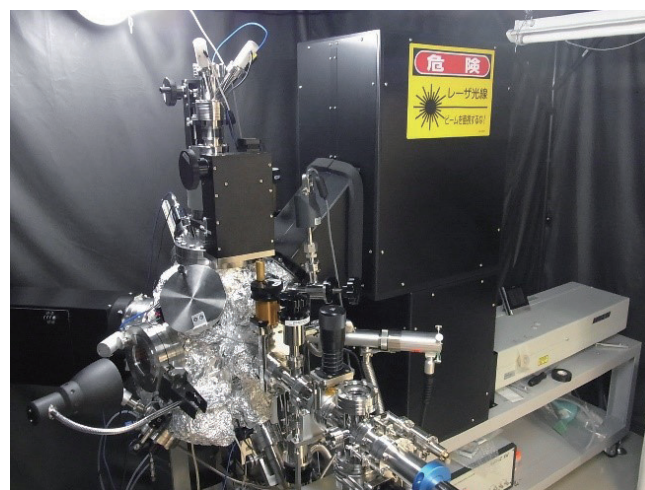


図1: PLD薄膜作製装置の外観。
右側にあるNd:YAGレーザーが、黒いボックス内の光学系を通して成膜チェンバー内に導入される。

バー(小型のポンプを取り付けてあり、チェンバー内を真空中に保ったまま薄膜試料を持ち運ぶことができる)によって、作製した薄膜試料を超低速ミュオンビームラインに持ち運んで測定する。

次にPLD装置の構成について説明する。図1にPLD装置の外観を示す。薄膜を作製した後にin-situで超低速ミュオンスペクトロメーターに搬送できるように、高真空を維持したまま、基板を成膜チェンバーと搬送チェンバーの間で移動できる仕組みをとっている。レーザーを照射するターゲット試料は同時に5つ設置できるため、複数の種類の物質を交互に積層した多層膜の作製も可能になっている。成膜の際、ターゲット試料を乗せる台座をモーター駆動で回転および揺動させることにより、ターゲット試料面のレーザーの照射位置を分散できるようになっている。基板はSiCヒーターによって最大800℃まで加熱することができるので、酸化物薄膜も作製することができる。また、基板

も回転させることができ、均一な薄膜の作製が可能である。さらに、基板の周辺にガスを導入するノズルが取り付けられており、酸素ガスを吹き付けて酸化物薄膜を作製することができる。成膜中と成膜後の薄膜の表面の様子を調べるために、反射高速電子線回折（RHEED）装置も取り付けられている。なお、図1では成膜チェンバーと搬送チェンバーが直に接続されているが、現在は2つのチェンバーの間にロードロックチェンバー（試料準備室）が導入されている。ロードロックチェンバーには一度に4枚の基板をマウントすることができるため、真空状態を保ったまま基板を交換して効率よく薄膜を作製できる。

次にレーザーに関して述べる。PLD装置で広く用いられているのはエキシマレーザーであるが、超低速ミュオンビームライン周辺のスペースや安全上の問題で本プロジェクトには適さなかったため、Lotis tii社製のNd:YAGレーザーを採用した。KTP結晶とKDP結晶を使い、調整が比較的簡単な3倍波である波長355 nmの紫外光を得ている。エネルギーは120 mJ、繰り返し周波数は1–10 Hzである。パルス幅はエキシマに近い16–18 nsecとなっている。レーザーの強度はOphir社製のパワーメーターで測定している。レーザーのパワーは励起ランプのパワーで調整可能だが、パワーの安定性を向上させるためにMetrolux社製の減衰器（アッテネーター）を今月中に導入する予定である。

【薄膜作製装置の設置に関する安全対策】

レーザーの使用に当たっては、KEKつくばレーザー専門部会の審査を経て許可を得た。図2に示すように、装置全体を暗幕で覆ってレーザー管理区域とし、警戒標識と運転表示灯を設置した。暗室の入口のカーテンにはリミットスイッチが設置され、不注意なレーザー被ばくを防ぐインターロックとなっている。レーザーゴーグルの選定の際には最大許容露光量（MPE）の計算を行い、放射露光がMPEを下回るように光学濃度値を確保している。その他の安全対策としては、成膜チェンバーのベーキングに用いる熱電対と温調器による過熱防止、漏電遮断用ブレーカーの設置、チェックシートの記入などを行っている。



図2: PLD薄膜作製装置を覆う暗幕などの安全対策の外観。

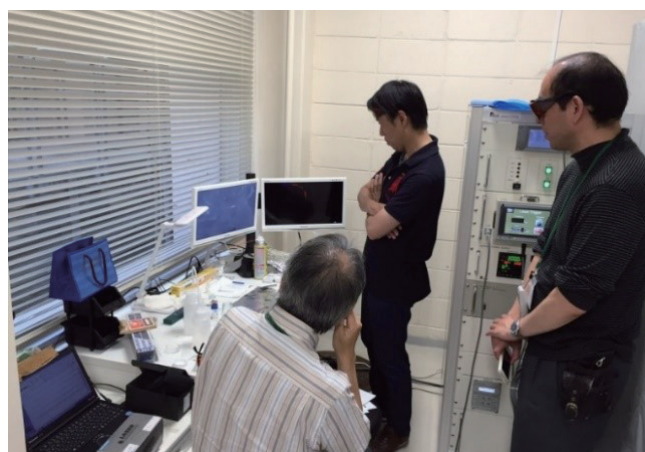


図3: 薄膜作製中の様子。右側の制御盤で成膜チェンバー内をコントロールし、中央のモニターで成膜の様子を確認する。

薄膜の作製の様子を図3に示す。暗幕の外に設置したターゲット、基板、真空系の制御盤、チェンバー内を観察するモニター、レーザーコントローラー、レーザーパワーメーターモニターPCなどによって、暗幕の外で成膜作業ができるようになっている。

【薄膜作製の実際】

最初に作製する薄膜は、鉄カルコゲナイド化合物FeSe、FeTeを選択した。これらの物質は、様々な鉄系超伝導体の中で最も単純な構造を有し、興味深い物性を示す。例えば、FeSeのバルク試料の超伝導転移温度 T_c は8 K程度であるが、CaF₂基板上に作製したFeSe薄膜の T_c は14 K程度まで上昇する（Y. Imai *et al.*, PNAS 112, 1937 (2015).）。また、SrTiO₃基板上に作製したFeSeの単層膜では、およそ65 K以下で超伝導ギャップが開くという報告もある（S. He *et al.*, Nature Mater. 12, 605 (2013).）。FeTeについては、バルク試

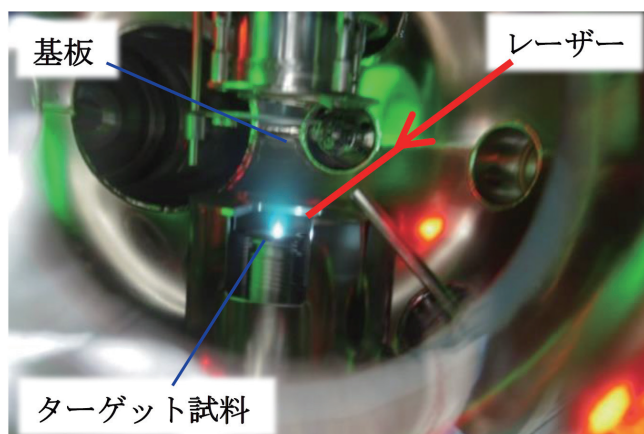


図4: 薄膜作製中の成膜チェンバー内の様子。
右上からレーザーがターゲット試料に入射し、薄
青色のブルームが形成されている。

料は反強磁性金属だが、MgO 基板上に作製した FeTe 薄膜は $T_c \sim 9$ K の超伝導を示す (Y. Han *et al.*, Phys. Rev. Lett. **104**, 017003 (2010).)。なお、FeSe と FeTe のターゲット試料は東北大学小池洋二教授のグループに提供していただいた (H. Abe *et al.*, Physica C **470**, S487 (2010).)。

薄膜作製中の成膜チェンバーの中の様子を図4に示す。Nd:YAG レーザーが右上からターゲット試料に入射し、その場所から上部の基板に向かって薄青色の柱状のプラズマ発光が伸びている。このプラズマはブルームと呼ばれ、レーザーで瞬間的に蒸発した原子、分子、イオン、クラスターなどのターゲット試料の成分である。この成分が基板に堆積して薄膜を形成する。

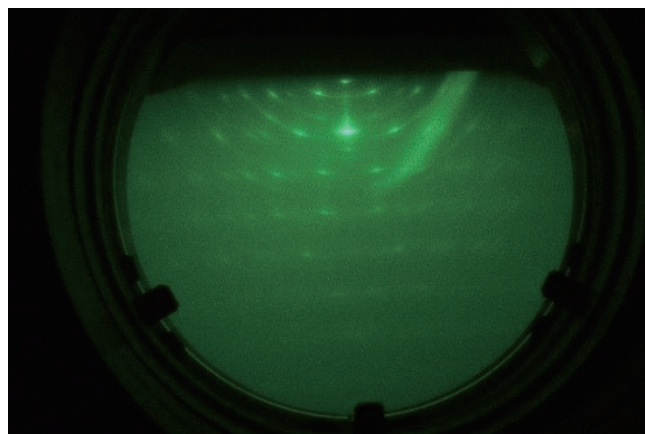


図5: FeTe 薄膜の表面の RHEED 回折パターン。

薄膜の作製を終えた後、RHEED によって薄膜の表面の様子を観察する。初期の頃は薄膜の品質や RHEED 自体の調整で苦労したが、最近では、図5に示すような RHEED 回折パターンを得られるようになった。作製した薄膜を取り出した後に、X 線回折や電気抵抗測定などで薄膜試料の評価と物性測定を行っている。

以上、KEK 東海キャンパスに設置された PLD 薄膜作製装置について概説した。薄膜の作製はまだ始まったばかりで、装置の検討や調整すべき点は山積しているが、多くの薄膜試料を作製して経験を積んでいき、超低速ミュオンを用いた表面、界面の測定に適する品質の薄膜試料を作製していきたい。