

# 金型材料への高強度パルス重イオンビームを用いた表面処理技術に関する研究

富山大学 電気電子システム工学科

准教授 伊藤弘昭

(平成20年度一般研究開発助成 AF-2008009)

キーワード：パルス重イオンビーム，パルス電力技術，表面処理

## 1. 研究の目的と背景

高強度パルスイオンビームは、パルス電力技術と呼ばれる高電圧・大電力パルス発生技術を用いて発生されるパルス幅 100ns 程度でイオン電流が kA を超えるイオンビームを指す。比較的容易に発生できる 100 A/cm<sup>2</sup> のビーム電流密度であっても、従来のイオンビームと比べると電力密度は格段に高い。このため、材料開発への応用を目的とした研究開発が行なわれている。このようなパルスイオンビームを材料表面に照射すると、イオンの浸入深さ程度（数百 nm：イオン種やビームエネルギーに依存する）の表面層をパルス幅程度（数百ナノ秒）で断熱的に加熱することができる。加熱された表面層はビーム照射終了後、材料深層への熱拡散で急速に冷却されることから、加熱と冷却の速度が 10<sup>9</sup>deg/sec を超える超高速熱過程を実現できる。ターゲットの到達温度はターゲット材料、パルス幅、ビームイオン種、加速エネルギーに依存するが、例えば SiC にパルス幅 100 ns 程度の窒素等の中質量イオンを照射する場合 100 A/cm<sup>2</sup> 程度で 2000°C まで加熱することができ、高速の熱プロセスによる再結晶化、アモルファス化、注入イオンの活性化などの効果が期待できる[1-4]。さらにパワー密度を増加させると、照射された固体表面層は気化温度を超え、アブレーションプラズマと呼ばれる高フラックスの粒子束が生成される。これを利用することで高速の薄膜生成が可能となる[5, 6]。これらの効果はパルスレーザーを利用しても得られるが、パルスイオンビームは極めて効率の高いエネルギー寄与、イオン種・エネルギーの選択による付与エネルギープロファイルの制御、イオン導入を同時に期待できる、広い面積への同時処理などの特徴を有している。このため高強度パルスイオンビームの材料プロセスへの応用が注目されている。

一方、塑性加工において、金型は製品の品質を決定する重要なものであり、その製作には多くの時間とコストが費やされている。金型の製作において、表面粗さの低減、マイクロクラックなどの表面欠陥層の除去、形状精度改善のために最終的には磨き仕上げが行われるが、ほとんどの金型は複雑な形状をしているため自動化は困難であり、手磨き仕上げとなっている。そのため手磨き工程は熟練者の技能に大きく依存し、長時間を要するため効率化改善が課題となっている。また、金型は使用に伴って摩耗や変形してしまうので、耐摩耗性を改善するために、硬質クロムめっき、

物理的蒸着法や化学的気相蒸着法による皮膜処理など様々な表面処理が施されている。この金型の消耗という問題は従来からの課題となっている。

そこで、本研究は上述した高強度パルスイオンビームの特徴を生かし、パルスイオンビーム技術のさらなる応用として、金型材料への高強度パルス重イオンビーム照射による金型の表面仕上げと耐摩耗性向上などの表面改質処理を同時に行うことができる新しい表面処理技術の確立に向けた基盤技術の開発、および基礎的な研究を行い、新しい表面処理技術の実用化に向けた知見を得ることを目的として研究を行った。

まず、このような表面処理技術を実現するためには、多様なイオン種の発生、ビーム純度の向上、イオンエネルギー・電流密度の制御などが必要となり、これに対応したビーム技術が必要である。しかし、従来のパルスイオン技術では、誘電体の表面フラッシュオーバーを利用したイオン源を用いているため、発生されるビームは主に陽子ビームであり、また純度は通常のイオンビームに比べて格段に低い[7, 8]。このため、これらの材料分野への応用が大きく制約されてきた。これまで著者らはパルスイオンビームの応用として次世代半導体への新しいイオン注入法（パルスイオン注入法）の研究を行ってきており、その観点から多様なイオン種の発生とビーム純度の向上などのビーム技術開発を行い、ガスパフプラズマガンを用いたパルスイオンビーム発生技術を開発し、窒素イオンビームの発生に成功した[9]。この技術により、気体をイオン源とするイオンビームを発生させることは可能になったが、金属などの元素が固体であるイオン種を発生させることはできない。このため、新しく開発した真空アーク放電を利用したイオン源を組み込んだ新しい高強度パルス金属イオンビーム源の開発を行った。真空アーク放電を利用する特徴としては、高真空中で動作し、放電ガスが不要、高密度プラズマの生成、また、電極材料の選択により任意の金属イオンの発生が可能であることが挙げられる[10]。また、純度向上および多様なイオンビーム発生が可能なパルスイオンビーム発生法である両極性パルス加速器（Bipolar Pulse Accelerator : BPA）[11, 12]の結果についても述べる。最後に、高強度パルスイオンビームを用いた表面処理技術実現に向けて、その基礎的な研究として金属などの固体材料へパルスイオンビームを照射してその有用性を検証したので、それらの結果について報告する。

## 2. パルス金属イオンビーム発生装置

図1にパルスイオンビーム発生装置の断面構造を示す。装置は真空イオンダイオードおよび加速パルス発生用同軸マルクス発生器から構成されている。イオンダイオードは正の高電圧パルスが印加される陽極と接地電位に保持される陰極から構成されている。陽極の内部にはイオン源としてプラズマガンが設置されており、陰極は加速ギャップに電子絶縁のための横磁界を発生する磁気絶縁コイルとして動作する。

加速電源として用いた同軸型マルクス発生器は、ドアノブ型のセラミックコンデンサを円筒状に配列した2ステージの構成で、各ステージの定格充電電圧は±60 kVである。発生器は絶縁油で満たされた直径60cm<sup>φ</sup>、長さ80cmの円筒タンク中に設置されている。マルクス発生器のスイッチとして2個の電界歪型放電スイッチが使用され、これらをトリガーすることにより負荷にパルス電圧を供給する。出力定格は、開放端電圧240 kV、合成容量8.33 nF、蓄積エネルギー240 Jである。

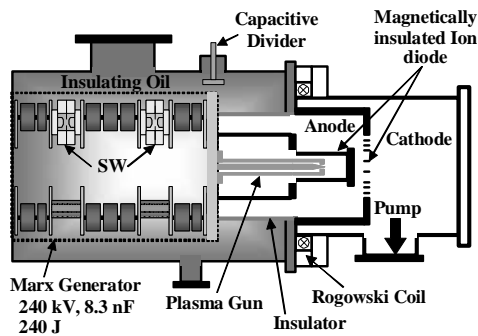


図1 パルスイオンビーム発生装置の概略図

図2は磁気絶縁ダイオードの構造を示す。ダイオードは先端が直径60mm、長さ115mmの円筒状の陽極、および格子構造の陰極から構成されている。陽極内部にはイオン源としてアルミニウム真空アークイオン源が設置されており、加速ギャップに向けて高密度プラズマが供給される。陽極の先端には直径60mm、厚さ5mmのステンレス板が取り付けられており、その中央部には直径30mmの開口部が設けられている。

陰極は、厚さ1mm、幅10mmのストリップ状の磷青銅板で作製されており、加速されたイオンに対して高い透過率を確保するため中心部は格子構造になっている。また、陰極は加速ギャップに電子流絶縁用の磁場を発生させるために8の字形の巻き線形状となっており、8ターンの磁場コイルとして動作する。磁場コイルには250μF、5kVのコンデンサバンクが接続されており、立ち上がり時間が50μsのパルス電流によって加速ギャップの中央部に0.8Tの均一な横磁場が発生する。実験はギャップ長 $d_{gk}=10\text{mm}$ 、真空度 $5\times 10^{-3}\text{Pa}$ で行った。

図2の挿入図にパルスイオンビーム源用のイオン源として使用された真空アークイオン源の電極構造を示す。電極は円筒状の外電極と棒状の内電極からなる同軸構造となっており、内電極を陰極、外電極を陽極としている。陽極は内径10mm、外径15mm、陰極は外径6mmで、何れも純アルミニウム製である。陽極の先端には直径5mmのアーチャーが取り付けられており、テーパ状の陰極と陽極アーチャーとの間に1mmの放電ギャップを形成し

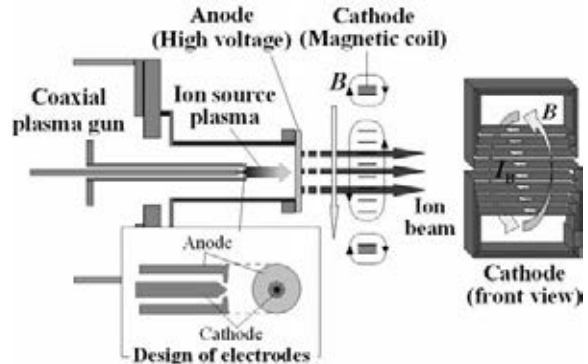


図2 磁気絶縁ダイオードの概略図

ており、この間で真空アーク放電が発生すると電極のアブレーションによりプラズマが生成される。このイオン源の先端は、ダイオードの陽極から50mm上流の軸上に設置され、3.3μF、30kVのコンデンサバンクで駆動する。

図3は加速実験におけるダイオード電圧( $V_d$ )、ダイオード電流( $I_d$ )、ビームのイオン電流密度( $J_i$ )の典型的な波形を示す。実験はマルクス発生器の充電電圧を50kVとし、アークイオン源の放電電流の立ち上がりから $\tau_d=8\mu\text{s}$ 後に加速ギャップに高電圧パルスが印加した。イオン電流密度は、飛行時間差法によるイオンエネルギーの評価のため、2個のバイアスイオンコレクター(BIC)を陽極からそれぞれ50mmおよび150mmに設置し、両位置でのイオン電流密度の同時観測を行った。図より、ダイオード電圧と電流はほぼ同時に立ち上がり、それぞれピーク値220kV、12kAとなっていることがわかる。このとき $z=50\text{mm}$ でのイオン電流密度 $J_{i1}$ はダイオード電圧 $V_d$ の立ち上がりから約45ns後に立ち上がり、ピークイオン電流密度 $230\text{A}/\text{cm}^2$ 、パルス幅40nsのパルスイオンビームが得られていることがわかる。一方、 $z=150\text{mm}$ でのイオン電流密度 $J_{i2}$ のピークは $z=50\text{mm}$ の場合に対して96nsの時間差があり、この値よりイオンビームの速度は $1.07\times 10^6\text{m}/\text{sec}$ と算出することができる。このとき1価のアルミニウムイオンを仮定すると、イオンの運動エネルギーは161keVと推定できる。このエネルギーはダイオード電圧のピーク値に比べやや低い値となっている。

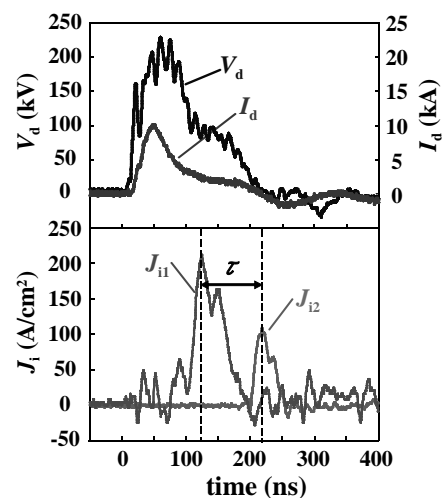


図3 飛行時間差法によるイオンエネルギー評価実験結果

イオンビームのエネルギーとイオン種をトムソンパラボラ分析器 (Thomson parabola spectrometer : TPS) を用いて評価した。

図4はイオントラック検出プラスチックCR-39に記録されたトラックパターンの一列を示す。分析器の質量分解能が不十分のため、重イオンについては正確な電荷・質量比を評価することはできないが、アルミニウムイオンを仮定すると1価, 2価, 3価に対応する位置にトラックが観測されていることがわかる。また、水素原子イオンに対応する位置にもトラックが観測されており, Al<sup>+</sup>イオンおよび不純物である水素イオンが加速されていると推定される。図4より, Al<sup>+</sup>, Al<sup>2+</sup>, Al<sup>3+</sup>, およびH<sup>+</sup>のエネルギーはそれぞれ140~270keV, 220~540keV, 300~740keV, 170~190keVである。イオントラックの計数により各イオン種の構成比の評価を行った。その結果, 全トラックに対するアルミニウムイオンの合計 (Al<sup>+</sup>, Al<sup>2+</sup>, Al<sup>3+</sup>) の割合は89%と評価され, 89%のイオン純度が得られていることが分かった。

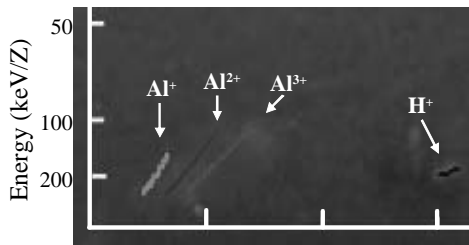


図4 観測されたトラックパターン

この結果から, 金属などの導電性の固体をイオン源とした高強度パルス重イオンビーム発生技術の開発に成功した。

### 3. 両極性パルス加速器の開発

これまで多種のイオン種を発生させるためプラズマガンを用いたパルス重イオンビーム発生技術を開発し, 元素が気体, または金属である各種イオン種のイオンビーム発生を可能にした。ビーム純度に着目すると, 開発されたビーム発生技術では90%前後であった。ビーム純度50~70%程度の従来のビーム発生技術に比べると純度はかなり向上したが, さらなるイオン純度向上を目指した新しいパルス重イオン加速器として両極性パルス加速器の開発を行った。

図5にBPAの動作原理の概略図を示す。BPAは, 接地電位の陽極, ドリフト管, 接地された陰極の三電極から構成されている。加速用電源はドリフト管に接続されており, 負パルス(持続時間:  $\tau_p$ )と正パルスの連なった両極性パルスが印加される。両極性パルス加速器の基本動作は, ドリフト管に両極性パルスが印加されると, まず負極性の電圧パルスが印加されるので, 1stギャップに到達したイオンビームはドリフト管に向かって加速される(図5参照)。その後, 加速されたイオンビームの先端が2ndギャップに到達した時にパルスの極性が反転して正極性の電圧が印加される。これによりイオンは2ndギャップで再加速される。従来のパルスイオンビーム技術に対して両極性パルス加速器の主な特色は以下の通りである。

- (1) イオン源を有する陽極を接地電位とすることができる。
- (2) イオン種の質量差に伴う走行時間差を利用して不純物イ

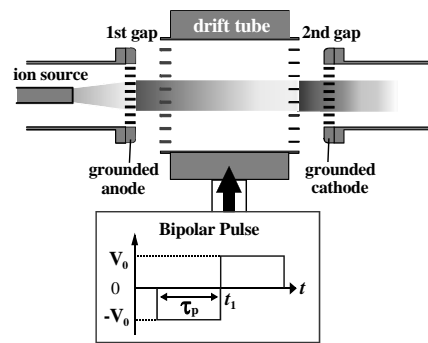


図5 両極性パルス加速器の概要図

オンの除去が可能で, イオン純度の向上が期待できる。

- (3) 2回の加速によりパルスパワー装置出力電圧の2倍の加速エネルギーが得られる。さらに, ドリフト管を接続することで, 多段加速器に拡張することができる。

図6に実験に使用した実験装置の磁気絶縁ギャップの概要図を示す。ドリフト管は電子絶縁用磁界コイルとしても動作し, 量加速ギャップに横磁界を生成する。高い伝送効率を得るためにコイルの左右(陽極と陰極に面する面)は, それぞれ8本の燐青銅板からなる格子構造で, 各燐青銅板は直列に接続されており, 8ターンのコイルを構成している。ドリフト管には高電圧が印加されるため, 磁場発生用のパルス電流は誘導的に絶縁されたコイルを介して外部コンデンサバンク(500 $\mu$ F, 5kV)から供給され, ギャップ間に0.7Tの電子絶縁用磁場を生成する。陽極は直径78mm, 厚さ5mmの真鍮製の電極で, 直径4mmの穴を均一に開けることで60%程度の透過率が得られている。陽極内にはイオン源としてプラズマガンが取り付けられている。

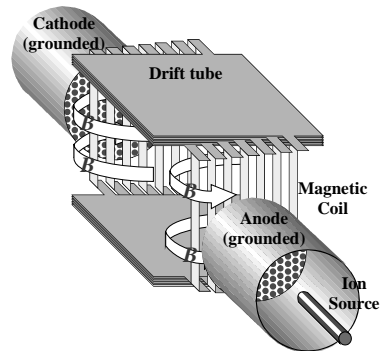


図6 BPAの磁気絶縁ギャップ概要図

図7に両極性パルスを用いた加速実験の実験配置を示す。陽極表面から50mmの位置(ドリフト管内), および陰極から25mmにBICを設置し, 1stギャップおよび2ndギャップで加速されたイオンビームの計測を行った。実験では, イオン源として窒素ガスバフプラズマガンを使用し, 1stギャップおよび2ndギャップのギャップ長を10mm, 絶縁磁界強度0.35Tとした。

図8に実験結果を示す。2個のBICの波形は同時計測ができないため異なるショットのものである。図8(a)より, 1stギャップの下流では, イオン電流密度 $J_{i1}=40A/cm^2$ , パルス幅 $\sim 30$ ns, が得られていることがわかる。イオン電流密度のピークは両極性パルスの

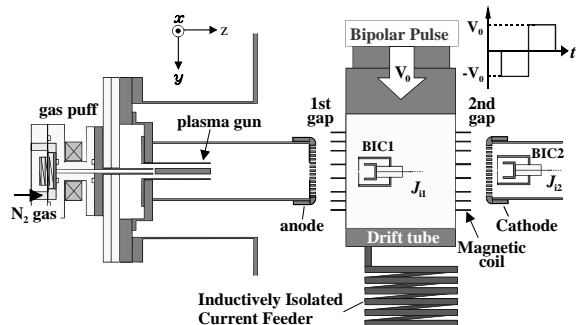


図7 イオンビーム加速実験装置配置図

負パルスのピークから 45ns 遅れており、この遅れ時間から 1<sup>st</sup>ギャップ加速後のイオンのエネルギーは、1 価の窒素イオンを仮定すると 130keV 程度と見積もることができ、この値は加速電圧とほぼ一致する。一方、2<sup>nd</sup>ギャップ加速後のイオン電流密度  $J_{12}$  は力性パルスの正パルスのピークから 11.5ns の遅れで 2A/cm<sup>2</sup> のピーク値、パルス幅 ~30 ns というパルスイオンビームが観測された。今回の実験で使用されたドリフト管はエネルギー 200keV の 1 価の窒素イオンに対して設計されたものであることを考慮に入れて、この時間差から、イオン種とエネルギーを評価すると、2 価の窒素イオンが 350keV 程度のエネルギーまで加速されていると考えられ、2<sup>nd</sup>ギャップで特定のイオン種（窒素イオン）のみが追加加速されていることがわかった。この結果から、両極性パルスによるパルス重イオンビームの多段静電加速を実証することができた。なお、 $J_{12}$  は  $J_{11}$  に比べて極めて低い値となっている。これはドリフト管の長さやビーム長が整合されていないこと、ビームの発散の影響によりビーム管内でのビーム伝搬効率が低いことなどによると考えられる。

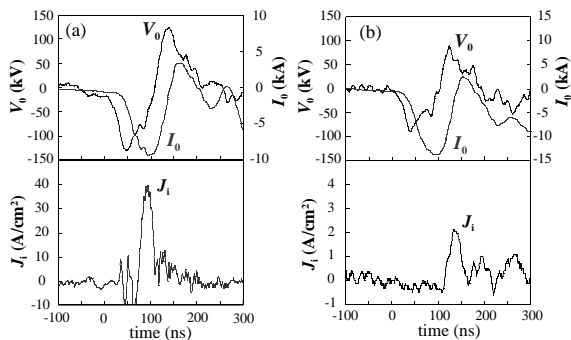


図8 加速実験結果

#### 4. パルスイオンビームの照射実験

次に、開発したパルスイオンビーム発生装置を用いて金属材料等への照射実験を行った。照射実験に使用したイオン種は水素および窒素である。また、ターゲット材料としてステンレス、軟鉄、銅、アルミニウムを使用した。

ステンレスターゲットにパルス窒素イオンビームを 1 ショット照射した時の照射前後のターゲット表面の SEM 画像を図 9 に示す。ビーム照射前には明確な圧延痕がみられるのに対し、照射後は圧延痕が完全に消え、表面が滑らかになっていることがわかる。これはビーム照射によりステンレス表面が一旦熔融し、その後再

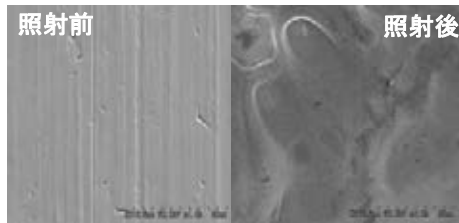


図9 ステンレスターゲットのビーム照射前後の SEM 像

凝固したためだと考えられる。また、図 10 は上記ターゲットの照射前後の X 線回折パターンを示す。照射前にみられた Fe のピークが照射後には完全に消失しており、CrFeNi の (200) 面が顕著になっている。これはビーム照射によって表面が熔融・再凝固したあるいは表面の一部がアブレーションしたことにより除去されたため、表面の結晶性が大きく変化したことを示唆している。次に、イオンビームのイオン種や照射回数を変えた時、ステンレスターゲットの硬度に及ぼす影響を調べた。その結果を表 1 に示す。ここで  $z$  と  $r$  はそれぞれ陽極先端からの距離と中心軸からの距離を表す。表 1 より、いずれの照射条件においてもビーム照射前に比べて硬度が低下していることがわかる。硬度の低下はビーム強度の高い中心軸上 ( $r=0$ mm) で著しく、ビーム種では窒素の場合に大きく低下する傾向にある。また、窒素についてはビーム照射回数が増加すると、硬度が低下することがわかった。

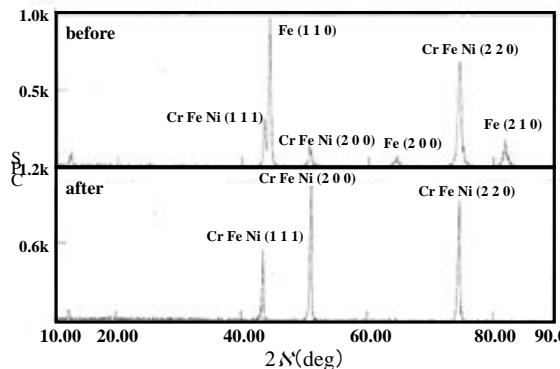


図10 イオンビーム照射前後の X 線回折パターン

表 1 ビーム照射後のビッカース硬度

照射位置	$z=300$ mm, $r=0$ mm	$z=300$ mm, $r=40$ mm
照射前	400 HV	
H <sub>2</sub> 1 shot	358 HV	373 HV
N <sub>2</sub> 1 shot	334 HV	346 HV
N <sub>2</sub> 5 shot	249 HV	304 HV

軟鉄および銅ターゲットにパルス水素イオンビームを 1 ショット照射した時の照射前後のビッカース硬度を表 2 に示す。軟鉄においては、ビーム照射前後で硬度の変化はほとんどなかったのに対して、銅ターゲットは大幅（約 19 倍）に硬度が向上した。ステンレスターゲットと同じようにビーム照射前後のターゲット XRD で評価を行った結果、銅ターゲットにおいて 220 面、200

面, 111 面のピーク強度が 2~2.5 倍に増加した。一方, 軟鉄についてはビーム照射後, 110 面のピーク強度が 1.5 倍程度の増加が観測された。

表 2 軟鉄および銅のビーム照射後のビッカース硬度

試料	軟鉄	銅
照射前	157 HV	38 HV
H <sub>2</sub> 1 shot	151 HV	728 HV

最後に, アルミニウムをターゲット材料として高強度パルス窒素イオンビームの照射実験を行った。実験は最初にアルミニウム表面に形成されている酸化膜を取り除くためにバフ研磨を行い, 洗浄した後にビーム軸上の位置に設置して照射実験を行った。イオンビームの照射回数は 3 回である。図 11 にビーム照射前後のアルミニウムターゲットの X 線回折パターンの結果を示す。この結果から, パルス窒素イオンビーム照射によってアルミニウムのピーク以外に窒化アルミニウムの 3 つのピーク AlN(002), AlN(110), AlN(112) が現れているのがわかる。この照射実験に関しては今後より詳細に行う予定である。

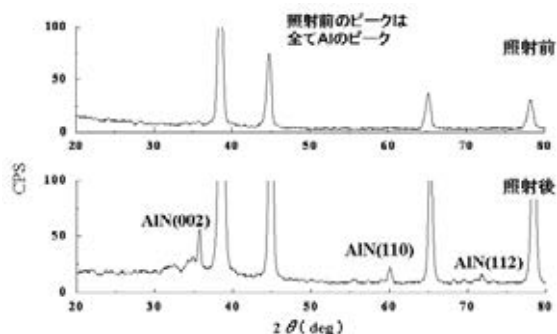


図 11 Al ターゲットのビーム照射前後の XRD パターン

## 5. まとめ

真空アークイオン源を使用したパルス金属イオンビーム発生技術の開発を行った。加速電圧 220 kV, 電流 12 kA の条件で動作させた時, 陽極から 50 mm 下流で 200 A/cm<sup>2</sup> を越えるイオン電流密度が得られた。また, 加速イオンの分析を行った結果, イオンビームには 1 価から 3 価のアルミニウムイオンと水素イオンが含まれており, アルミニウムイオンの比率(純度)は 89% であった。また, イオン純度の向上が期待できる新しいパルス重イオン加速技術である両極性パルス加速器の開発を行い, ガスパフ窒素イオン源を用いた加速実験において, 特定イオンのみが 1<sup>st</sup> ギャップおよび 2<sup>nd</sup> ギャップで加速されていることが確認でき, 両極性パルスを用いた静電多段加速を実証できた。今後, 電極構造等の改良を行い, より詳細に特性を評価する必要がある。

ビーム照射実験の結果から, 各種材料の表面状態を変化させることができ, ターゲット材料とイオン種の組み合わせによって, ビーム照射の効果が異なることがわかった。イオンのドーピング効果については今後検討する必要があるが, この結果より, パルスイオンビームを利用した金属など各種材料の表面改質への応用が期待できることが示された。今後, この研究によって開発したパルス金属イオンビーム発生技術は他の固体イオン源の開発にも拡張でき, 加えてこれまでに開発した気体用のガスパフプラズマガンを用いたパルスイオンビーム発生技術と組み合わせることで, 多くのイオン種を発生させることができるので, 今後ターゲット材料(金型材料)にあったイオン種を調べていく必要がある。目的にあわせてイオン種を選択することが可能となる

## 謝辞

本研究は, 公益財団法人天田財団の研究助成の支援を受けて行われた。ここに厚く御礼申し上げます。

## 参考文献

- [1] A. D. Pogrebnjak, G. E. Remnev, I. B. Kurakin, A. E. Ligachev, Nucl. Instrum. & Methods in Phys. Res. B **36**, 286 (1989).
- [2] G. E. Remnev and V. A. Shulov, Laser Particle Beam **11**, 707 (1993).
- [3] D. J. Rej, H. A. Davis, M. Nastasi, J. C. Olson, E. J. Peterson, *et al.*, Nucl. Instrum. & Methods in Phys. Res. B **127/128**, 987 (1997).
- [4] X. P. Zhu, M. K. Lei and T. C. Ma, Nucl. Instrum. Methods in Phys. Res. B **211**, 69 (2003).
- [5] K. Yatsui, X. D. Kang, T. Sonogawa, T. Matsuoka, K. Masugata, Y. Shimotori, T. Satoh, S. Furuuchi, Y. Ohuchi, T. Takeshita, and H. Yamamoto, Phys. Plasma **1**, 1730 (1994).
- [6] C. A. Meli, K. S. Grabowski, D. D. Hinshelwood, S. J. Stephanakis, D. J. Rej and W. J. Wagenaar, J. Vac. Sci. Technol. **A13**, 1182 (1995).
- [7] Y. Hashimoto, M. Yatsuzuka, and S. Nobuhara, Jpn. J. Appl. Phys. **32**, 4838 (1993).
- [8] K. Masugata, H. Okuda, K. Yatsui and T. Tazima, J. Appl. Phys. **80**, 4813 (1996).
- [9] H. Ito, H. Miyake and K. Masugata, Rev. Sci. Instrum. **79** 103502 (2008).
- [10] I. Brown, Rev. Sci. Instrum. **65**, 3061 (1994).
- [11] K. Masugata, Y. Shimizu, Y. Fujioka, I. Kitamura, H. Tanoue and K. Arai, Nucl. Instrum. & Methods in Phys. Res. A **535**, 614 (2004).
- [12] H. Ito, K. Igawa, I. Kitamura and K. Masugata, Rev. Sci. Instrum. **78**, 013502 (2007).