

スパッタリングにおける粒子輸送とプロセス圧力の効果

Particle transport during sputter deposition process and effects of process pressure

中野 武雄*、馬場 茂

Takeo NAKANO and Shigeru BABA

成蹊大学 理工学部 物質生命理工学科

Dept. of Materials and Life Science, SEIKEI Univ.

1 はじめに

スパッタリング製膜において、ターゲットからスパッタ放出された直後の粒子は、数~20 eV程度の高いエネルギーを持つ。これに対し、雰囲気中存在するガスは高々数 100 の温度に対応する熱速度しか持たないため、スパッタ粒子はガスと衝突するごとに減速され、最終的には周囲のガス温度に対応する熱速度に至る。このようなプロセスは「熱化 (Thermalization)」あるいは「熱中性化」と呼ばれ、この前後でスパッタ粒子の輸送の様式は大きく異なる。

このようなスパッタリング粒子の輸送過程は、古くから興味の対象とされてきた。これはひとつには、スパッタ粒子が基板面内にデリバリーされるプロセスは膜厚分布を決めることになり、種々のアプリケーションにおいて非常に重要だからである。またもうひとつには、高いエネルギーを持つ粒子が薄膜形成の最中に存在すると、膜の構造や諸物性が変わってくる [1, 2] ため、熱化前の高速なスパッタ粒子の役割が注目されていたからである。

粒子輸送過程を解析的に取り扱った古典的論文のひとつに、Keller と Simons による報告 [3] がある。彼らは、スパッタ粒子がガスとの衝突を経て熱化する位置の分布が、ある特性長さ λ_p を持つ減衰型の指数関数によって表されると仮定した (以降ではこの λ_p を熱化距離と呼ぶことにする)。熱化プロセスは衝突回数で決まるので、この長さはスパッタ粒子のガス中での平均自由行程に比例する値となる。従って λ_p は圧力 p に反比例し、 $p\lambda_p$ はスパッタターゲットの材料 (と放出エネルギー分布)、ガスの種類と温度によって決まる定数となる。この値は「 PD 積」などと呼ばれる。計算機の能力と共に、粒子輸送の問題にはモンテカルロ法の適用例が多くなった (レビューとして [4, 5]) が、Keller-Simmons の流れを受けた解析的な研究も続いており、近年では軸対称な 2 次元系に対する拡張 [6] や、ターゲット・基板・雰囲気ガスの温度・熱流などを考慮した拡張 [7] が報告されている。

スパッタ粒子の輸送様式は、熱化の前後で 2 種類に分けられる。熱化より以前では、スパッタ粒子は空中に浮かぶガス原子 (分子) を弾き飛ばすようなかたちで進行する。これは「弾道的 (ballistic)」な輸送、と呼ばれる。一方熱中性化後には、スパッタ粒子は周囲のガスと相互に衝突しあって気相中をランダム・ウォークするかたちになる。これは「拡散的 (diffusive)」な輸送と呼ばれる。例えば雰囲気の圧力が低く、先に述べた熱化距離 λ_p が装置の特徴的な長さに比べて長い場合には、スパッタ粒子は熱化の前に基板や容器壁面に到達してそこに付着するので、弾道的な輸送過程が支配的となる。逆に圧力が高く、 λ_p が短くなると、スパッタ粒子の多くがターゲット近傍で熱化し、拡散的な輸送過程が支配的となる。

* 〒 180-8633 東京都武蔵野市吉祥寺北町 3-3-1, E-mail: nakano@st.seikei.ac.jp

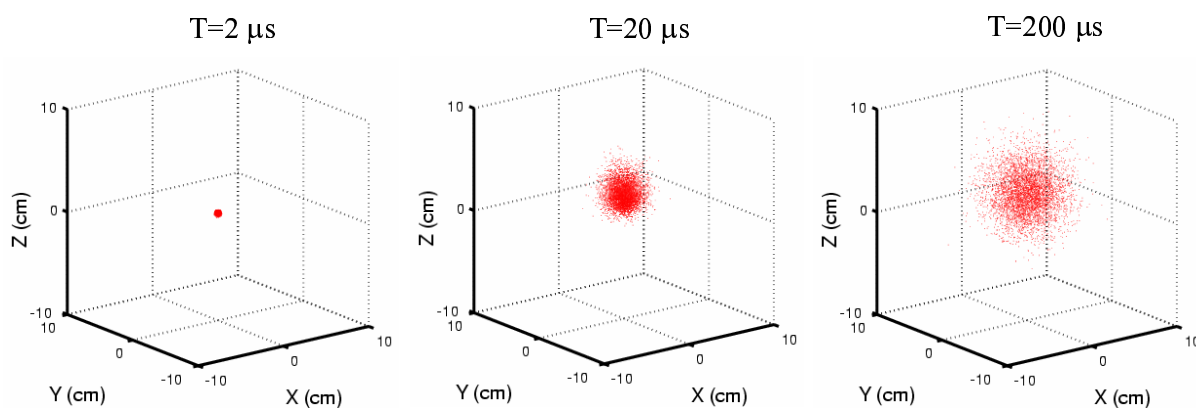


図 1: シミュレーションによる銅スパッタ原子の輸送の様子

この 2 つの輸送過程のどちらが支配的かによって、成膜速度のターゲット - 基板間距離 (T-S 距離) 依存性、膜厚分布、膜の構造・物性などが顕著な影響を受ける。本稿では、まず熱化距離や PD 積をモンテカルロ・シミュレーションで評価した結果を示し、続いて実際の実験によって、成膜速度や膜厚分布の圧力依存性を評価した結果を紹介する。また反応性スパッタにおいて、スパッタ金属粒子と反応性ガスとの収支によって決まるモード遷移が、輸送過程から受ける影響についても述べる。

2 熱化過程のモンテカルロ法による評価

ガス中に入射した、高エネルギーの粒子の熱化距離を、モンテカルロ法を用いた計算機シミュレーションによって評価した。我々の用いている計算ルーチンでは、環境温度の Maxwell 分布に従うガスとスパッタ粒子とが衝突する過程を、両者の相対速度の分布に基づくかたちで処理しており、弾道的～拡散的な輸送過程を統一的に取り扱えることが特徴である [5]。計算プログラムは <http://surf.st.seikei.ac.jp/HISPUT/> からダウンロード可能になっている。

図 1 は、5 Pa 400 K の Ar ガス雰囲気において、原点から z 軸正方向に向かって 5 eV の Cu 原子を打ち出したときの、粒子位置の時間発展を示したものである。モンテカルロ法によって多数の粒子を繰り返し追跡し、画面上にプロットしてある。

20 μs では、スパッタ粒子の分布は達磨のような形をしており、主として $z > 0$ の領域に分布していることがわかる。これは銅のスパッタ粒子が当初持っていた運動エネルギー (あるいは運動量) により、弾道的なプロセスを経て移動した結果と考えられる。

時間が経過して 200 μs になると、粒子の広がりはより等方的になる。これはスパッタ粒子のエネルギーが落ち、周囲のガスと熱平衡になった状態で拡散運動 (ランダムウォーク) をしたからである。

図 2 は、このようにして追跡した多数の Cu 原子をまとめ、速さ (=速度の絶対値) の分布と、集団の z 座標の平均値との時間推移を表したものである。時間が経過するとともにスパッタ粒子は減速し、20 ~ 50 μs の時間が経過すると、速さ分布は雰囲気 Ar と同じ 400 K の Maxwell 分布に従うようになる。ただし Cu は Ar よりも重いので、同じ温度でも速さの分布は異なる。図 2 に示してあるのは、Cu の原子質量を用いた Maxwell 分布であることに注意してほしい。

速さ分布が Maxwell 分布に移行することに対応し、銅原子の z 座標の平均値も、20 μs 程度で増加が止まり、その後は一定になっている。これは、当初スパッタ粒子が持っていた z 軸正方向の運動量が失われた後の拡散的輸送では、粒子の運動は等方向のランダムウォークであるために、

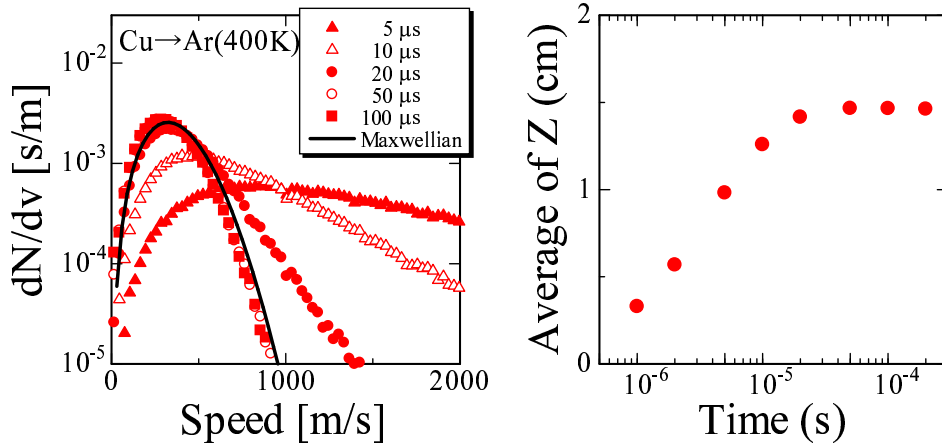


図 2: 速さ分布関数と平均位置の時間変化

粒子集団の「重心」が変化しないことに対応している。すなわち、この長さが熱化距離 λ_p に対応すると考えて良い。

この距離に雰囲気の圧力を乗ずれば PD 積を得るが、実際のスパッタリング製膜過程では、スパッタ粒子の運動エネルギーは初期分布を持つ。実験的には Thompson の式 [8] が、この分布を良く再現すると言われている。Thompson の式は、具体的には

$$f(E) \propto \frac{E}{(E + E_b)^3} \left\{ 1 - \sqrt{(E + E_b)/\Gamma E_i} \right\} \quad (1)$$

というかたちをしている。ここで E_b はスパッターターゲット材料の結合エネルギー、 E_i は入射する一次イオンのエネルギー、 $\Gamma \equiv 4M_i M_t / (M_i + M_t)^2$ は入射イオンとターゲット原子の質量 M_i 、 M_t を反映した、エネルギー伝達の尺度を与える量である。

この式を用いて初期エネルギーに分布を与え、Al, Cu, Mo の PD 積を計算すると、それぞれ 5.9, 8.3, 11.7 Pa cm、という値が得られる。今回 E_i は 400 eV と仮定したが、式 1 の分布形状は E_i には鈍感であるため、この値による PD 積への影響は小さいと考えている。

PD 積は、スパッタ原子の質量が大きいほど大きな値となった。弾道的輸送のプロセスにおいては、スパッタ原子の速度が充分大きいから、Ar ガスは近似的に止まっているものと考えてよい。このときスパッタ原子 - Ar ガス原子の二体衝突を考えると、軽い原子では後方散乱が起こるため、原子が前方へ進行しにくい。原子が重くなるにつれてこの効果は小さくなり、Ar より重い原子では前方散乱のみが、重ければ重いほど前方に集中するかたちで起こる。よって PD 積が大きくなる。また原子が重くなって Ar との質量比が拡大すると、スパッタ原子から Ar へのエネルギー伝達が起こりにくくなり、熱化するまでの衝突回数が増える。この効果も PD 積を大きくするのに寄与する。

3 成膜速度・膜厚分布の圧力・T-S 距離依存性

前節の計算結果を受けて、実際に製膜実験を行った。ターゲットに対向した、基板ホルダに相当する位置に、3 つの水晶振動子型膜厚モニタを備えた図 3 のようなホルダを置き、スパッタ条件を変化させながら各モニタにおける成膜速度を測定した。ターゲットとホルダは円板形で、円筒型真空容器 (内径 21 cm、高さ 25 cm) の対称軸上に置かれている。モニタのうち 2 つはターゲットに対向する面に置き、もう 1 つは背面に置いた。対向面のひとつのモニタは対称軸上に、

対向面のもうひとつと背面のモニタとは、対称軸から 28 mm 離れた位置に設置した。本文の以降では、図 3 にあるように、これらのモニタを Center, Edge, Back と呼ぶこととする。

なお本装置の T-S 距離は 30~70 mm の間で連続的に変更できるようになっており、これによって輸送過程に影響を与える種々の条件を考慮しながら実験することが可能となった。

蒸発源は直径 50 mm のマグネトロンターゲットで、これに DC 電力 50 W を印加してスパッタリングを行った。ターゲット材料としては、Al, Cu, Mo の金属ターゲットを用いた。マグネトロンに特有のエロージョントラックは、およそ直径 22 mm のリング状に形成された。放電ガスには Ar を用いた。流量を 10 sccm 一定とし、排気バルブのコンダクタンスを調整して圧力を 0.4~16 Pa の範囲で変化させ、実験を行った。

図 3 は、T-S 距離を変化させながら、ターゲット対向面にある 2 つのモニタ、Center と Edge における成膜速度を測定したものである。ここでは最も圧力の低い 0.4 Pa の場合と、最も高い 16 Pa の場合を、Al, Cu, Mo 各金属ターゲットの場合について示してある。それぞれのモニタ位置、圧力条件における成膜速度の T-S 距離依存性は、図からわかるように、ほぼ減少する指数関数によって近似できた。すなわち成膜速度 r は、T-S 距離 d に対して

$$r = \exp(-d/L) \quad (2)$$

のような関係にあることがわかった。低圧極限で点蒸発源の場合は、成膜速度は距離の二乗に反比例するはずであるが、この場合は円形のエロージョントラックを反映して指数関数様になった

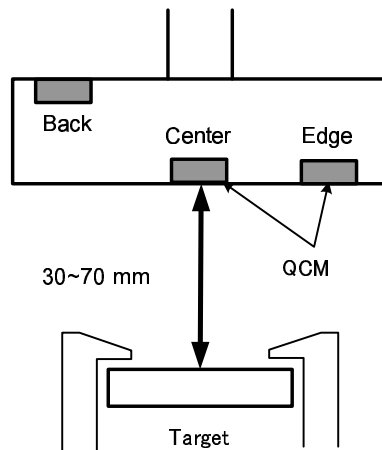


図 3: 成膜速度測定用モニタステージ

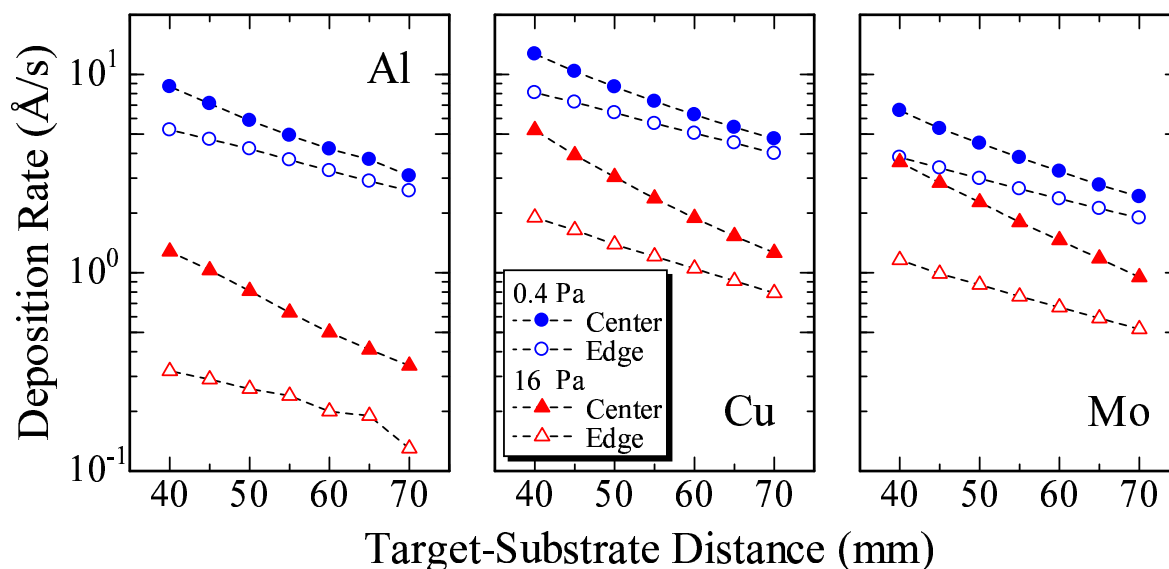


図 4: 成膜速度の T-S 距離依存性

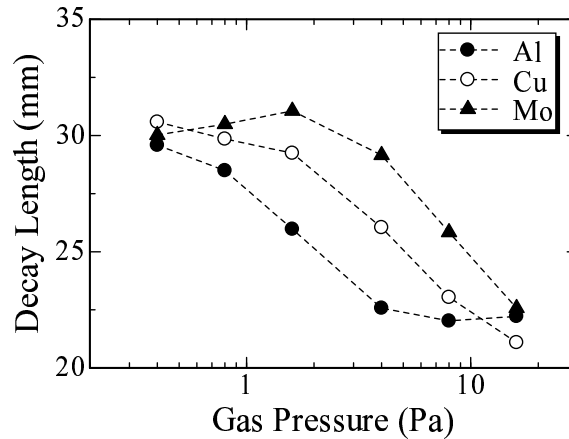


図 5: 成膜速度の減衰長さの圧力依存性 (Center モニタ)

のであろう。

図 3 から、圧力が高くなると、同じ T-S 距離での成膜速度が低下している様子がわかる。Al では特に、1 桁以上の低下が見られた。また、高圧では T-S 距離が短いときの Edge の値が、Center に比べて著しく小さく、面内の膜厚の均一性が劣化していることがわかる。均一性は T-S 距離を大きくしていくと回復していくが、同じ T-S 距離では高圧の方が低圧よりも均一性が悪いことは共通している。さらに、片対数グラフの傾きを見ると、T-S 距離の増加に対する成膜速度の減少割合 (式 2 における L) は、高圧ほど急になっていることがわかる。Center におけるこの傾き L (以降では減衰長と呼ぶ) をそれぞれの圧力において求め、各金属ターゲットに対してプロットしたのが図 5 である。

低圧の極限ではおよそ $L = 30$ mm、高圧では $L = 22$ mm と、それぞれ減衰長は各金属で同じような値になった。またこの両者間の推移は、軽い元素である Al において最も低い圧力で生じ、Cu, Mo の順に高圧力で推移が起こった。

低圧・高圧での減衰長は、それぞれ弾道的な粒子輸送と、拡散的な輸送とが支配的となっている場合の輸送様式を反映しているのであろう。中間圧力で減衰長がこの間を推移していくのは、輸送様式が徐々に変わっていく様子を反映しているものと考えている。推移が生じた圧力は、前節で求めた PD 積の順と等しくなっていること、また本実験で測定対象にした T-S 距離と推移圧力との積が、 PD 積の値におおむね対応していることも、この考えを支持している。

図 6 は、T-S 距離を固定して、成膜速度の圧力依存性を見たグラフである [9]。ここでは T-S 距離が 40 mm の場合と 60 mm の場合を示してある。図中では Center, Edge, Back での値を、それぞれ C, E, B で表わしている。図 6 から、まず背面での成膜速度が圧力とともにピークを持つこと、そのピークよりも高圧側では、対向面においても成膜速度が減少することがわかる。このピーク圧力は、Al, Cu, Mo の順に高くなっており、前節で求めた PD 積の大きさの順番、および減衰長 L の推移圧力に対応しており、この現象も熱化の影響によるものであることを示唆している。またこのグラフからも、Center に対する Edge での成膜速度比 (Edge/Center 比) が圧力と共に小さくなっており、高圧領域では、対向面での膜厚均一性が圧力上昇とともに劣化していることがわかる。

Back, Edge 各位置における成膜速度の比率を求め、モンテカルロ・シミュレーションの結果と比較したのが図 7 である。図 6 と同じく、黒丸が T-S 距離 40 mm のときの結果 (対応するシミュレーション結果は実線) であり、白丸が T-S 距離 60 mm の結果 (同じく破線) である。ここでは比率をとったため、ターゲットからのスパッタ粒子フラックスの圧力変化はキャンセルできてお

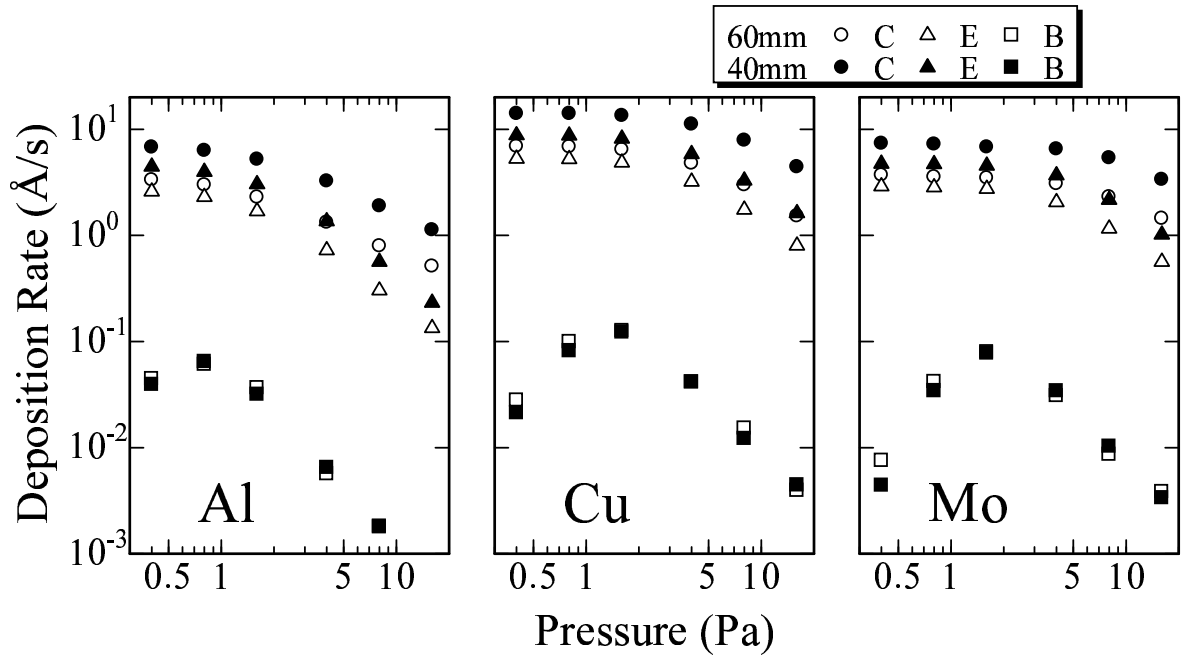


図 6: 成膜速度の圧力依存性

り、輸送過程の影響のみを見ることができる。また Edge と Back の位置では、ターゲットから見た角度が比較的近いから、スパッタ放出時の角度分布による影響もそれほど小さくなく、粒子輸送過程に関する特徴を見るのに都合が良い。

実験結果とシミュレーションの結果は、Back/Edge 比がピークを取る圧力、ピークの大さの両方で非常に良い一致を示しており、スパッタ粒子輸送過程の描像としてモンテカルロシミュレーションが適切であることを示している。

このピークの起源については、スパッタ粒子が熱中性化した位置の分布をシミュレーションによって確認することで明らかになった [9]。具体的には、低圧の極限ではスパッタ粒子はガスと衝突せず直進するために、背面への回り込みは少ない。圧力が上昇すると徐々に熱化がはじまり、そ

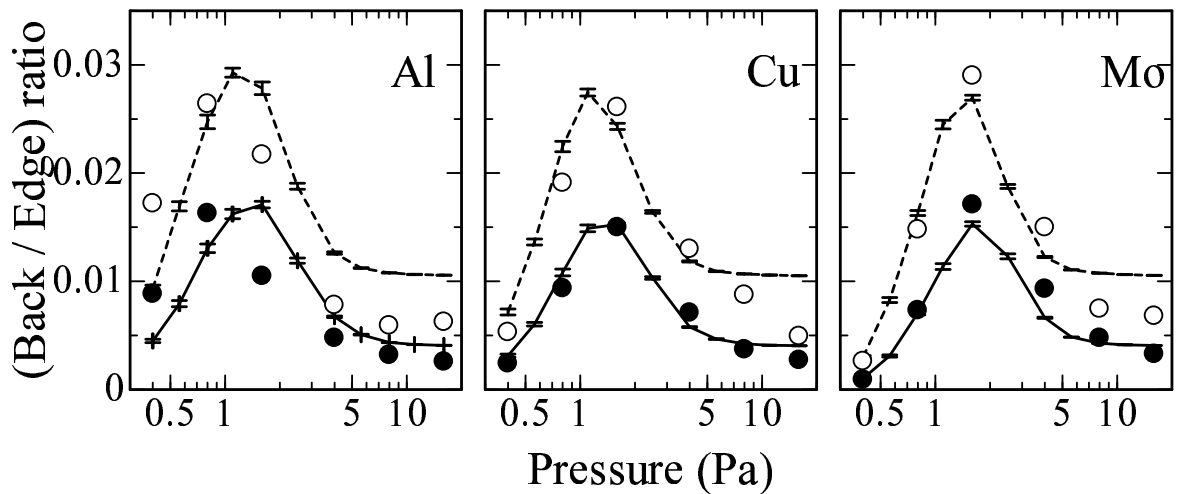


図 7: 回り込み付着の圧力依存性

の位置分布は圧力上昇と共にターゲットに近づいてくる。熱化距離が T-S 距離と同程度になると、ホルダの側面近傍で熱化したスパッタ原子は、拡散によって背面へ到達できる可能性が比較的高くなる。ここからさらに圧力が増加すると、熱化位置の分布はターゲット近辺へ収斂していき、ほとんどの粒子が熱化した後、拡散過程を経て基板ホルダに到達する。この場合、ターゲット面・その他の壁面は拡散するスパッタ粒子にとって吸収境界として作用するので、ターゲット付近からランダムウォークを開始したスパッタ粒子にとって、ホルダ背面は再び到達しにくい場所になる。

熱化後の拡散輸送が支配的となるような高圧力領域において、ターゲット対向面における膜厚分布が劣化する現象にも、Back/Edge 比の圧力依存性と同様の議論が適用できる。圧力が低い極限では、ターゲットからの放出位置 (=エロージョントラックの形状) と放出角度分布とから、単純な射影で膜厚分布が決まる。例えばターゲット法線方向への放出が強い余弦分布の場合では、エロージョントラック直上の膜厚が大きく、不均一な分布になりやすい。圧力が増加して散乱が起こりだすと、この分布はぼかされるので、分布の均一性は向上する場合が多い。しかしさらに圧力が増えて拡散輸送が支配的になると、粒子放出源であるターゲット近傍に近い壁面への付着が増える。このため例えば、小さなターゲットを用いた場合に基板端での成膜速度が落ちたり、大きなターゲットでもエロージョントラックのサイズが大きく T-S 距離が小さな場合には、トラック中心直上での成膜速度が極端に低下するようなことが起こる。

4 反応性スパッタと粒子輸送過程

反応性スパッタリングは、金属ターゲットに酸素・窒素などのガスを導入してスパッタリングを行ない、酸化物・窒化物の薄膜を作製する手法である (以降は酸化物の場合を想定して話を進める)。良く知られているように、このプロセスではターゲット表面が金属の状態では製膜が進行する金属モードと、表面が酸化物で覆われた状態になる化合物モードとが存在する。金属モードではターゲットのスパッタ率が大きいため、成膜速度が大きく、よって酸素が膜に良く吸収され、酸素分圧の低い状態が保たれる。この状態から酸素の導入量を増やし、ターゲット表面の酸化が進行すると、金属原子の放出が減少して酸素の吸収も減り、酸素分圧が非線形に上昇する。この非線形性は Berg らにより、複数のバランス方程式からなるシンプルなモデルで説明され、流量に対するモード遷移のヒステリシスや、その実験パラメータ依存性などを良好に再現するに至った [10]。

Berg らのモデルは強力であるが、ターゲットおよび容器壁面それぞれを、金属表面と酸化物表面の混合状態とみなし、この混合比や、イオン・スパッタ粒子・反応性ガスなどのフラックスが面全体均一であるとする、いわば 0 次元のモデルである。これに対し、反応性スパッタリングにおいて、容器壁への金属原子・反応性ガス分子のデリバリーが位置分布を持つ効果を取り込もうとする試みがいくつか存在する。例えば小林は、Direct Simulation Monte Carlo 法による流体シミュレーションを TiN の反応性スパッタに適用し、膜の窒化度合いが位置分布を持つという実験結果の再現に成功している [11]。また Kubart らも同様の試みを NiCr の酸化膜に対して Berg モデルを拡張するかたちで行い、モード遷移や組成分布の再現に成功している [12]。

ターゲットから放出されたスパッタ金属原子が壁面に付着すると、酸素ガスに対してゲッタポンプとして作用する。このポンプの排気速度は、ガスの吸着確率とスパッタ原子が付着した面積との積で与えられる。通常この面積は、真空排気に用いるポンプの吸入口に比べてずっと大きいので、排気速度も大きくなり、酸素分圧は低く抑えられる。

しかし金属原子の時間あたりの蒸発量は限られているから、この排気機構には吸収できる流量に限界がある。この流量を越えた分の酸素は、排気速度の小さい真空ポンプのみでしか排出できず、よって分圧が上がってターゲットを攻撃する酸素のフラックスが増える。これによってターゲット表面の酸化が進行し、スパッタ率が落ちてゲッタ作用がますます減少し...という正のフィードバックがかかる。このため、金属モードから化合物モードへの遷移は、ある流量で急激に起こ

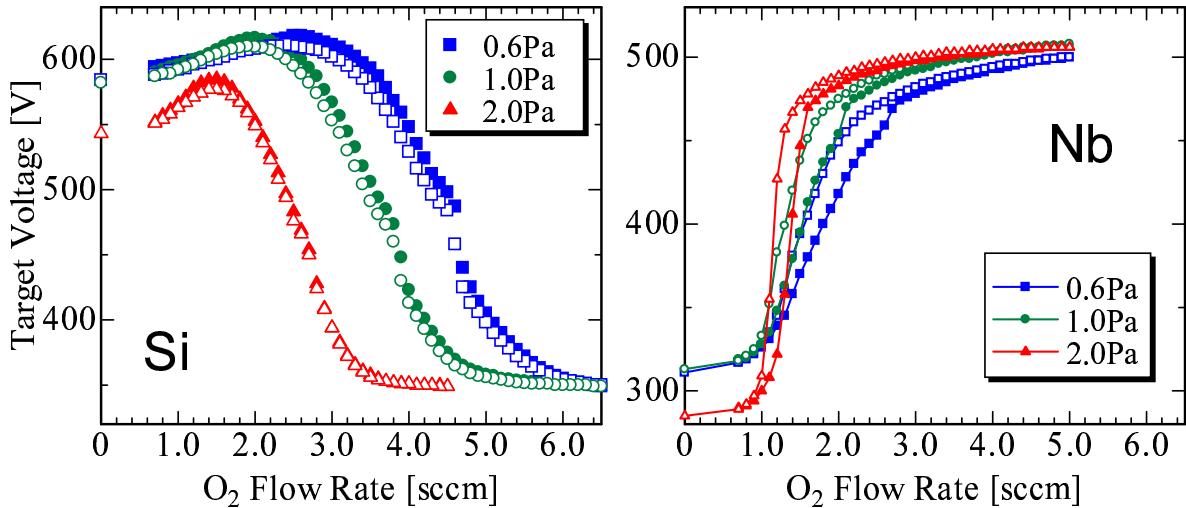


図 8: Si および Nb の反応性スパッタリングにおけるモード遷移

ることが多い。

以上の理解に基づくと、反応性スパッタにおける金属モード 化合物モードの遷移は、ターゲットからスパッタされた金属原子の酸化飽和が引き金となること、よって遷移流量は、ターゲットから時間あたりに放出される金属原子の量によって支配されること、が導かれる。

Berg のモデルでは、explicit なかたちでは雰囲気圧力は出てこない。すなわち、ターゲットから (電流に対応したイオンフラックスとスパッタ率に応じて) 放出されたスパッタ原子は、すべて容器壁面へ付着するものと仮定している。しかし前節で見たように、原子番号の小さい原子では、1~2 Pa 程度でも一部のスパッタ粒子は熱化によって拡散的な輸送に移行しており、付着分布に偏りが生じたり、ターゲットに戻ってゲッタ作用に寄与できなくなる原子が生じることなどが予想される。実際 Olsson らは、アルミナの反応性スパッタにおいて、雰囲気 Ar 圧力の影響について指摘している [13]。そこで我々も、ターゲット金属の原子質量に着目して、Ar 圧力を変えたときに、反応性スパッタのモード遷移がどのような影響を受けるか調べ、スパッタ粒子の輸送過程について考察してみることにした。

実験は、図 3 と同じターゲット - 基板系で行った。ただしここでは膜厚モニタの代わりに、Si 基板を置いて膜を堆積させ、製膜後に XPS で組成を評価した。まず Ar を 20 sccm 導入し、排気バルブを絞って 0.6~2.0 Pa の所定の圧力にした。その状態で、電力一定モードで DC 100 W を金属ターゲットの陰極に印加し、放電を行った。放電開始後、酸素を導入し、放電電圧の変化によってターゲット表面状態の変化を観察した。金属ターゲットとしては、Si, Ti, Nb を用いた。ここでは最も軽い Si と、重い Nb について整理した結果を示す。

図 8 は、このようにして測定したモード遷移の背景 Ar 圧力依存性である。それぞれ酸素流量の低い側が金属モード、高い側が化合物モードに対応する。Si と Nb とでモードと電圧との関係が逆になっているが、これは Depla らが種々の金属について行った結果 [14] と一致しており、それぞれの金属元素に固有の事情によるものと考えている。

図中の filled/open な印は、それぞれ流量の増加時と減少時の結果に対応する。電力一定モードでの運転時において、金属モードでの放電電圧が高く、化合物モードが低い Si のヒステリシスが緩和されるのは、化合物モードへ遷移してスパッタ率が低下する効果を、ターゲット電流が増加してイオンフラックスが増す効果が一部キャンセルするためと考えている [15]。このため電圧が逆の関係にある Nb では、やや増減におけるヒステリシスが見られている。

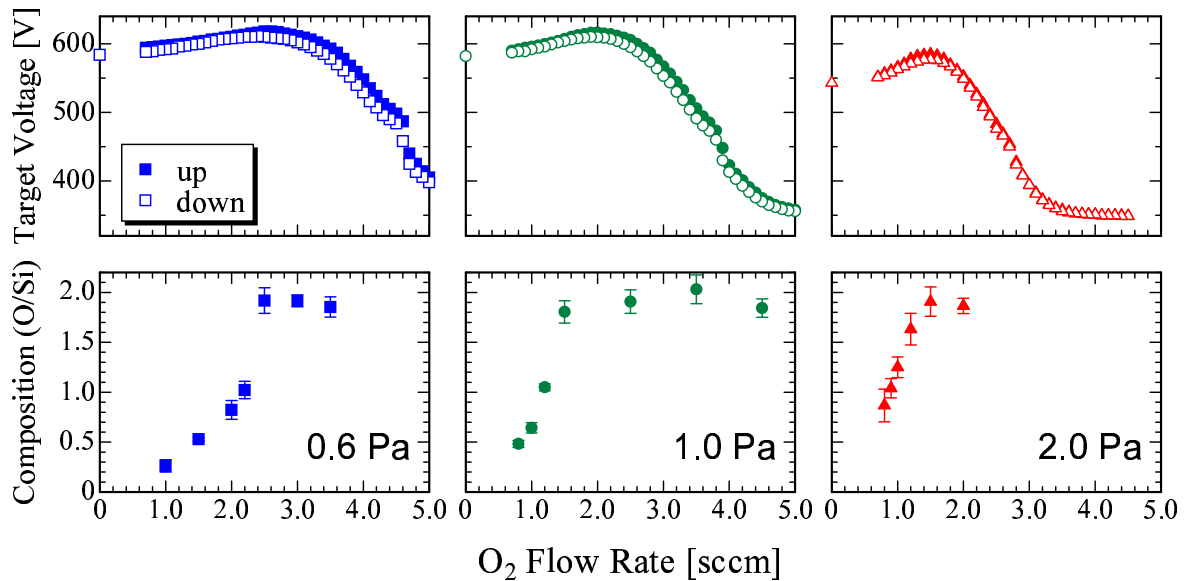


図 9: Si のモード遷移と膜組成

Ar 圧力の影響を見ると、Nb ではいずれの圧力においても酸素流量 1.0 sccm あたりから電圧の遷移が始まっているのに対し、Si では遷移が始まる流量が明確に異なっている。Ar 圧力 0.6 Pa においては 3 sccm あたりまでが金属モードと考えられるが、2.0 Pa になると 2 sccm 以下で遷移が起こっているのが明らかである。先に述べたように、Berg モデルに基けば金属モードから化合物モードへの遷移はスパッタ金属原子のゲッタ作用の枯渇によって生じるから、0.6 Pa と 2.0 Pa とでは、基板や容器壁面が受ける Si 原子フラックスの総量が異なっていることを示している。

一方この両圧力における放電電力・電圧はほぼ同じであるので、ターゲットからの Si 放出がそれほど大きく変わるとは考えにくい。よってこれは、一度ターゲットから放出された Si 原子の輸送過程の違いに由来するものと考えられる。実際、図 5 や図 6 における Al (周期表で Si の前) に対応させてみると、1 Pa 程度で既に熱化が進行していることがわかる。これによって、拡散的な輸送に移行したスパッタ原子が、ランダムウォークのうち相当量ターゲットに戻り、ゲッタに寄与できなかったのであろう。一方 Nb は重いので、このあたりの圧力ではまだ弾道的輸送が主である。よってターゲットから放出した原子がそのまま容器壁に付着してゲッタ作用に寄与し、モード遷移を開始する酸素流量が一定となったのであろう。

さらに、モード遷移付近の流量において実際に製膜を行い、膜の組成を XPS によって評価した。Si の結果を図 9、Nb の結果を図 10 にそれぞれ示す。各圧力において、上側はモード遷移を示す放電電圧の流量依存性であり、これらは図 8 と同じものである。下側は流量軸を共通に取り、膜の組成を対応させたものである。製膜時の酸素流量は、少ない方から増加させて目的の値に設定した。製膜時に大きな電圧変動は見られなかったことから、遷移領域のヒステリシスの効果はそれほど大きくなかったと考えている。

Si の結果を見ると、特に Ar 圧力が 1 Pa の場合に顕著であるが、放電電圧が高い、金属モードと思われる領域で、既に膜の酸化が飽和していることがわかる。一方 Nb では、金属モード化合物モードの遷移状況と、膜組成とはほぼ対応しているように見える。この Si の挙動は、先に述べた標準的な反応性スパッタモデルとは異なっている。すなわち、金属モードにおいては容器壁面はまだ酸素ゲッタの能力を残しており、酸化が飽和した段階では化合物モードになっていないなければならない。

この Si における Berg モデルとの齟齬は、膜厚分布 (すなわち容器壁各所における Si 原子のフ

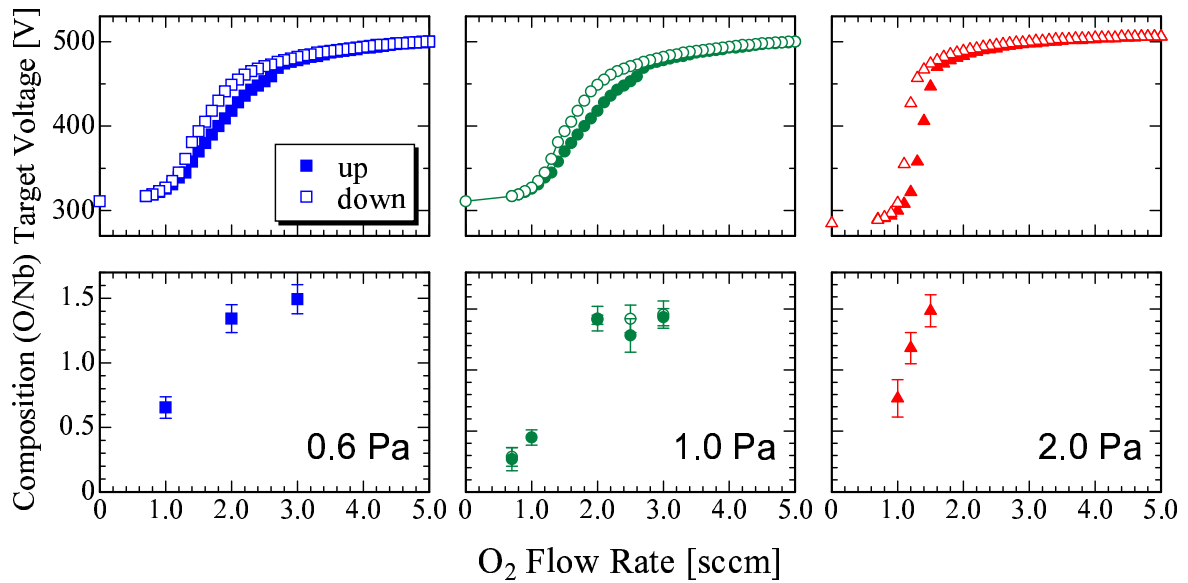


図 10: Nb のモード遷移と膜組成

ラックスの分布) に起因するものであろうと考えている。つまり、拡散的な輸送においては熱化位置に近い壁面への到達確率が高くなるので、基板位置における Si フラックスが、容器壁面の他の場所に比べて相対的に低くなっているのだろう。このため、容器壁の他の場所がゲッタ能力を残しており、金属モードを保っている状況で、基板では到達した Si 原子が完全に酸化してしまう状況が実現されているのであろう。ここでは Berg の 0 次元的モデルは適用できなくなっており、スパッタ粒子の輸送過程と、その結果として生じている膜厚分布 (フラックス分布) が、モード遷移そのものや膜組成に影響を及ぼしていることが理解できる。

5 おわりに

雰囲気ガスとの衝突によってスパッタ粒子が徐々に減速されて熱化し、輸送様式が弾道的なものから拡散的なものに移行するプロセスが、成膜速度の圧力・T-S 距離に対する依存性や膜厚分布、さらに反応性スパッタにおけるモード遷移や膜組成に与える影響について見てきた。シミュレーションから求めた、5~10 Pa cm という PD 積の値は、成膜速度・膜厚分布の圧力依存性と良く対応し、実際の製膜で用いられる典型的な T-S 距離では、どちらの輸送様式が dominant になるかの境界は 1~3 Pa 程度にあることが示された。また輸送過程は、スパッタ金属原子のフラックスを通して、反応性スパッタのモード制御や、得られる膜の組成に影響することがわかった。

スパッタリング製膜プロセスにおけるガス圧力は、一見影響が複雑に見えるが、これまで述べてきたように、スパッタ粒子の熱化を念頭に置くと、いろいろな変化が理解しやすい。本稿の内容が、読者が製膜を行う際の条件出しの一助になれば幸いである。

謝辞

本研究の一部は、文部科学省ハイテク・リサーチ・センター整備事業 (平成 16 年度~平成 20 年度) および文部科学省科学研究費補助金 (基盤研究 (C) No.19560048) による助成を受けて行われた。

参考文献

- [1] D. M. Mattox: J. Vac. Sci. Technol. A **7** (1989) 1105.
- [2] S. M. Rossnagel: J. Vac. Sci. Technol. A **7** (1989) 1025.
- [3] J. H. Keller and R. G. Simmons: IBM J. Res. Develop. **23** (1979) 24.
- [4] 元廣友美: セラミックス **33** (1998) 805.
- [5] 中野武雄: 真空 **45** (2002) 699.
- [6] I. Knittel, M. Gothe and U. Hartmann: J. Vac. Sci. Technol. A **23** (2005) 1714.
- [7] A. Palmero, H. Rudolph and F. H. P. M. Habraken: Journal of Applied Physics **101** (2007) 083307.
- [8] M. W. Thompson: Philos. Mag. **18** (1968) 377.
- [9] T. Nakano and S. Baba: Vacuum **80** (2006) 647.
- [10] S. Berg and T. Nyberg: Thin Solid Films **476** (2005) 215.
- [11] T. Kobayashi: Vacuum **74** (2004) 379.
- [12] T. Kubart, S. Zhao, T. Nyberg, S. Berg and E. Wäckelgard: *IVC-17/ICSS-13/ICN+T 2007* (Stockholm, Sweden, 2007) TESEP1-216.
- [13] M. K. Olsson, K. Macák, U. Helmersson and B. Hjörvarsson: J. Vac. Sci. Technol. A **16** (1998) 639.
- [14] D. Depla, S. Heirwegh, S. Mahieu, J. Haemers and R. D. Gryse: J. Appl. Phys. **101** (2007) 013301.
- [15] 飯村靖夫, 多久島和弘, 中野武雄, 馬場茂: 真空 **46** (2006) 171.