雰囲気ガスの流れと加熱がスパッタ粒子の輸送に及ぼす影響*

岩田 健一*¹・楠本 淑郎*¹

A Numerical Study of the Sputtered Particle Transport with the Ambient Gas Flow and Heating*

Kenichi IWATA*¹ and Yoshiro KUSUMOTO*¹

ULVAC Inc., 2500 Hagisono Chigasaki 253-8543 Kanagawa

(Received November 10, 2005, Accepted February 11, 2006)

The flux distribution of sputtered particles onto a circular substrate was numerically investigated, considering the ambient gas flow and the gas heating effect induced by sputtered particles. To explore the gas flow and the gas heating effects separately, two calculation methods were employed, namely the test multi-particle method (TMP) and the direct simulation Monte Carlo method (DSMC). The TMP with a frozen ambient gas flow was found to be suited for calculating the gas flow effect on a sputtered particle much heavier than Ar. For a lighter particle of which mass is comparable with or less than Ar, the DSMC becomes indispensable, because the rarefaction due to the gas heating increased the sputtered flux by 10% compared with that obtained by the TMP.

1. はじめに

スパッタされた粒子の基板への入射量や入射エネルギーは、薄膜の品質を決める重要な物理量である。これらの量を予測するためのスパッタ粒子輸送解析が広く行われている^{1,2)}。

ターゲットより発射されたスパッタ粒子が、雰囲気ガス分子に散乱されながら基板まで輸送される過程を解析する場合、雰囲気ガスが容器全体で静止熱平衡状態にあると仮定する場合が多い。しかし実際には、ガスの供給・排気に伴う流れが存在し、高エネルギーをもって発射されたスパッタ粒子との衝突により雰囲気ガスは加熱され、希薄化する³⁾。

雰囲気ガスがスパッタ粒子に与える影響を見るために以下の2つの方法を用いた。

- ① 多粒子モンテカルロ法¹⁾ (Test Multi-Particle Method, 以下TMP法)
- ② モンテカルロ直接法^{4,5)} (Direct Simulation Monte Carlo Method, 以下DSMC法)

①では、雰囲気ガスの速度、温度は固定され、スパッタ粒子のみが衝突散乱の影響を受ける。この方法を用いれば、ガス流れの効果を考慮できる。②では、スパッタ粒子により誘起されるガス流れ、ガス加熱までも考慮できる。ただし、②の計算コストは①に比べ10倍程度高い。どのような状況でこの2つの方法を使い分けるかは、実用上重要問題である。ここでは、軸対称スパッタ装置をモデルケースとして、上記の2つの計算結果を比較し、使い分けのための簡単な指針を与える。

2. 数値解析の概要

Fig. 1 に示すような円筒型スパッタ装置を考え、座標系は基板中心を原点 O とする円筒座標系 $O-rz$ を取る。側壁に設けた1 mmのスリットより、雰囲気ガスが流量 Q 、温度

Fig. 1 Schematic view of the sputtering apparatus.

$T_{g/in}$ で等方的に導入され、 $\phi 310$ mm のサセプタ周辺から等方的に排気される。容器内の圧力が設定圧力 P となるように、流出口でのコンダクタンスを調整する。ガス分子は、器壁温度 T_w で拡散反射されるものとする。スパッタ粒子は、基板(半径 $R=155$ mm)より120 mm離れた $\phi 310$ mmのターゲット全面から数流束 F_e で一様に発射される。発射エネルギーは、ターゲット内部でのスパッタ粒子が温度 T_e のマクスウェル分布に従うものとして決定する¹⁾。このとき発射エネルギーの平均値 E_e は、 $E_e = 2kT_e$ と表せる⁶⁾。ここで、 k はボルツマン定数である。発射方向は、余弦則に従う。器壁に到達したスパッタ粒子は、完全吸着される。

雰囲気ガス分子には Ar、スパッタ粒子には Al と W を選んだ。Al/Ar、W/Ar の質量比はそれぞれ、0.676 および 4.59 である。プロセス条件を

$$P=2 \text{ Pa}, Q=0, 1000 \text{ sccm}, T_{g/in}=353 \text{ K}$$

$$T_w=353 \text{ K}, F_e=1 \times 10^{20} \text{ m}^{-2}\text{s}^{-1}, E_e=10 \text{ eV}$$

と選んだ。

つぎに、スパッタ粒子の追跡法について述べる。TMP 法、DSMC 法共に、スパッタ粒子を導入する前の雰囲気ガスの流れを予め求めておく。これには、単一粒子種の DSMC 法

* 平成17年11月11日 第46回真空に関する連合講演会で発表

*¹ 株式会社アルバック (〒253-8543 神奈川県茅ヶ崎市萩園2500)

を用いる。

1) TMP 法：雰囲気ガス流れの計算から求められた定常状態での数密度 $n_g(\mathbf{x})$ ，温度 $T_g(\mathbf{x})$ ，流速 $\mathbf{V}_g(\mathbf{x})$ を用いて，セル内でのガス分子速度 $\mathbf{v}$ が従う速度分布関数を

$$n(\mathbf{v}; \mathbf{x}) = n_g \left(\frac{m_g}{2\pi k T_g} \right)^{3/2} \exp \left(-\frac{m_g |\mathbf{v} - \mathbf{V}_g|^2}{2k T_g} \right) \quad (1)$$

と仮定する．ここで， m_g はガス分子の質量である．あるスパッタ粒子と，(1)に従うガス分子との平均相対速度から，衝突確率を計算し棄却法を用いて衝突判断を行う．衝突すると判断された場合は，(1)に従って衝突相手の分子をランダムに選び，再び棄却法を用いて衝突相手が決まるまでサンプリングを繰り返す⁷⁾．

2) DSMC 法：定常な流れ場にスパッタ粒子を流入させて，スパッタ粒子とガス分子の両方を2種粒子に対するDSMC法により追跡する．

粒子衝突には，TMP 法，DSMC 法共に剛体球モデルを採用した．Ar, Al および W の粒子直径は，それぞれ3.54 Å, 2.66 Å および3.11 Å とした．タイムステップは，分離の原理とクーラン条件を満足するように，50 ns とした．系内のスパッタ粒子数がほぼ定常に達した後，時間間隔500 ns のサンプリングを500 ms に亘って行った．定常状態での超粒子数は，ガス分子が $\sim 10^5$ 個，スパッタ粒子が $\sim 10^4$ 個であった．

3. 結 果

Fig. 2 に定常状態での雰囲気ガスの流速分布と圧力分布を示す．流れは，容器の大半 ($r < 100$ mm) で淀んでおり，比較的速い流れは，容器の周辺部に局在している．約200 m/s で流入したガスは，流入口から25 mm 離れた点 A (Fig. 2) で約20 m/s まで減速し，流出口に吸込まれる時に再加速し，点 B で約50 m/s に達する．圧力は，流入口およびサセプタ周辺を除いた容器全体で，2 Pa となっている．

Fig. 3(a) および **(b)** は，それぞれ Al および W の入射流束 $F(r)$ (r は基板の半径位置) を示す．TMP 法および DSMC 法で得られた結果を，それぞれ○, △ および ■ で示した．

Fig. 3(a) と (b) を，TMP 法の結果で比較すれば，W の入射流束は Al に比べて約3.5倍多い．これは，重い W は雰囲気ガス分子に散乱されにくく，側壁に拡散したり，ターゲットに逆拡散する割合が，Al より少ないからであると考えられる．

Fig. 3 において，TMP 法で得られた入射流束の，ガス流れ無し (0sccm, ○) と有り (1000 sccm, △) の結果とを比較すると，Al および W 共に，基板周辺部に差異があることが分かる．この流れによる差異を

$$\delta(r) = \frac{F(r; 1000 \text{ sccm}) - F(r; 0 \text{ sccm})}{F(r; 0 \text{ sccm})} \quad (2)$$

で定義する．ここで $F(r; Q)$ は，流量 Q における入射流束である．**Fig. 4** に $\delta(r)$ ($80 \text{ mm} \leq r \leq 155 \text{ mm}$) を示す．サンプリング時間が短いため，データにはばらつきが見られるが， δ が r と共に増す傾向，また一般に $\delta_W(r) < \delta_{Al}(r)$ であることが分かる．図の実線はその傾向を明示するため， $\delta(r)$

Fig. 2 Flow field of the ambient gas; (a) gas flow velocity, (b) gas pressure.

Fig. 3 Incident flux of the sputtered particles on the substrate; (a) for Al, (b) for W.

Fig. 4 The difference between the incident fluxes with and without the gas flow.

Fig. 5 Gas heating and rarefaction effects by energetic sputtered particles; (a) temperature, (b) number density.

との2乗距離が最小となるようにフィットした r の4次式である。熱化したスパッタ粒子は、ガス流れに乗って基板周辺部まで輸送され、その効果は軽いスパッタ粒子ほど顕著である。本計算条件では、ガス流れの影響による入射流束の増加は高々15%程度であった。より高い圧力領域 ($P=133$ Pa) を扱った研究では、ガス流れの影響により入射流束が数倍増加すると報告されている⁸⁾。

高エネルギーでターゲットより発射されたスパッタ粒子は、雰囲気ガス分子と衝突することで、雰囲気ガスにエネルギーと運動量を与える。前者は雰囲気ガスの加熱とそれに伴うガスの希薄化を、後者は2次的なガス流れをひき起こす。Fig. 5(a)および(b)に、それぞれ $z=80$ mmにおけるガス温度および数密度を示す。ガス流量は、1000 sccmである。TMP法(○)とDSMC法(▲, ■)との差が、ガス加熱の効果を表している。中心部の温度は、Alで約110 K, Wで約130 K上昇した。また、ガスの数密度は、Alで約25%, Wで約28%減少し、希薄化した。スパッタ粒子が静止した雰囲気ガス分子に衝突すると、1回衝突当たり平均して、Alで約50%, Wで約30%のエネルギーをガス分子に与える。AlとWの発射エネルギーを等しく与えたにも拘わらず、Wの方がAlよりも加熱されるのは、雰囲気ガスに占めるWの割合(3030 ppm)がAlの割合(1550 ppm)より大きく、雰囲気ガスとスパッタ粒子との衝突数が多いからである。

Fig. 3(a)のAlの場合、DSMC法の入射流束(■)が、TMP法(△)に比べて約10%増加しているのは、このガス加熱の効果による。加熱に伴う希薄化を考慮するとTMP法に比べてガス分子との衝突回数が減り、その結果器壁へ散乱される粒子数も減り、基板へ入射する粒子数が増したためだと考えられる。Fig. 3(b)のWの場合、同様にガスが希薄化しているにも拘わらず入射流束は殆ど変化しなかった。重い

Wは、ガス分子と衝突しても散乱角は小さいので、入射流束に及ぼすガス密度の影響はAlと比べて小さい。このように、軽いスパッタ粒子ほどガス加熱の影響を受け易い。ガス加熱を考慮しないTMP法では、軽いスパッタ粒子に対して、入射流束を10%程度低めに見積もってしまう恐れがある。なお本計算条件では、AlおよびW共に、スパッタ粒子によって誘起される2次流れは、単一粒子種のDSMC法で得た雰囲気ガス流れの空間変動(数値揺らぎ)に埋没し、分離できなかった。

4. まとめ

雰囲気ガスの流れとガス加熱がスパッタ粒子の基板への入射流束に及ぼす影響について数値解析により調べ、以下の結果を得た。

- 1) 重いWは、軽いAlに比べて入射流束は3.5倍大きい。
- 2) TMP法を用いて、流量1000 sccmの流れの影響を調べた。軽い粒子ほどガスに流され易く、基板周辺で入射流束が、流れの無いときより最大18%増した。
- 3) DSMC法によりガス加熱について調べた。Alは110 K, Wは130 K, 温度が上昇した。
- 4) 加熱に伴うガスの希薄化により、Alの入射流束は、基板の全領域で10%増加したが、Wは殆ど変化しなかった。

Arに比べ充分重いスパッタ粒子の入射流束を求めるにはTMP法で充分であろう。この場合も熱化されたスパッタ粒子のガスによる輸送は最大10%オーダーの分布変動を起こし得る。数%以内の精密な膜厚分布制御が要求される場合にはガス流れを考慮したTMP法は必須といえる。Arに比べ軽いスパッタ粒子では、ガス加熱の効果が無視できない。このような場合にはDSMC法を用いる必要がある。ここで扱ったモデルでは入射流束は、TMP法とほぼ相似形を保ったまま大きさが10%増大した。しかし、マグネトロンスパッタのようにスパッタされる領域が局在化された系では局所的な加熱がひき起こされ、分布そのものに変動を及ぼす可能性も排除できない。今後の課題としたい。

謝辞

本研究の数値計算において、筆者らは、ペガサスソフトウェア株式会社 中館博博士に助力を得ました。ここに感謝いたします。

〔文 献〕

- 1) 南部健一, 森本 保, 後藤裕一: 機論, B 57(524) (1991) 3426.
- 2) 中野武雄: J. Vac. Soc. Jpn., 45(9) (2002) 699.
- 3) S. M. Rossnagel: J. Vac. Sci. Technol., A6(1) (1988) 19.
- 4) K. Nanbu: J. Phys. Soc. Jpn., 49(5) (1980) 2042.
- 5) M. S. Ivanov and S. V. Rogasinsky: Sov. J. Numer. Anal. Math. Modelling., 3(6) (1988) 453.
- 6) 熊谷寛夫, 富永五郎, 辻 泰, 堀越源一: 真空の物理と応用, (裳華房, 1988) 第10版, p. 67及び p. 73.
- 7) V. V. Serikov and K. Nanbu: J. Vac. Sci. Technol. A14(6) (1996) 3108.
- 8) A. Bogaerts, et al.: Plasma Sources Sci. Technol., 14 (2005) 191.