多重磁極型高周波マグネトロンスパッタ法による Co 薄膜の基板温度依存性*

桑原 豪^{*1}・後藤 貴則^{*1}・佐々重光祐^{*1}
田中 一学^{*1}・川畑 敬志^{*1}

Dependence on Substrate Temperature of the Properties of Co Thin Films Fabricated by RF Magnetron Sputtering with Multipolar Magnetic Plasma Confinement*

Tsuyoshi KUWABARA^{*1}, Takanori GOTOU^{*1}, Kousuke SASASHIGE^{*1},
Ichigaku TANAKA^{*1} and Keishi KAWABATA^{*1}

^{*1}Department of Electronics and Photonic System Engineering, Hiroshima Institute of Technology 2-1-1, Miyake, Saekiku, Hiroshima, 731-5193

(Received November 15, 2007, Accepted May 10, 2008)

The dependence on substrate temperature of the structural properties of Co thin films deposited on silicon substrates by RF magnetron sputtering with multipolar magnetic plasma confinement (MMPC) was investigated. The structure of the Co films was characterized by X-ray diffraction (XRD), and their surface morphology by atomic force microscopy (AFM). It was found that the surface morphology depended strongly on the substrate temperature. The surface of Co thin films deposited at 400°C exhibited round connected textures with a maximum Rq (root mean square roughness) of 5.48 nm, while the films deposited at room temperature exhibited salient connected textures with an Rq of less than 1.18 nm. Furthermore, the XRD spectrum intensity observed for the Co films deposited at 400°C was higher than that of the films deposited at room temperature.

1. はじめに

現在、Co 薄膜はハードディスクや磁気記録テープなど磁気記録薄膜媒体などに用いられており、現在も、磁気記録装置の更なる大容量化、高速化にむけて多くの研究開発が行われている。Co 薄膜の作製には低温、高速で成膜することが可能なマグネトロンスパッタ法が主に用いられている。しかし、強磁性体材料である Co をターゲットに用いた場合、通常のマグネトロンスパッタ法ではターゲット表面上の磁束密度が低下するため、堆積速度が遅く、低いスパッタガス圧力での成膜が困難である。本研究で用いた多重磁極型マグネトロンスパッタ法は、強磁性体材料の高速成膜に有効であることが知られている¹⁻³⁾。また、本スパッタ法では低圧力下での成膜が可能である²⁻⁴⁾。低圧力下のスパッタでは緻密な膜の製膜が可能である。緻密な膜は電気的特性、磁気的特性が優れており、さらに耐食性にも優れている⁵⁾。膜の成長の様相を調べることで緻密な膜の制御の方法の確立を目指している。本研究では、多重磁極型高周波マグネトロンスパッタ法を用いて、低圧力下 (8×10^{-2} Pa) で基板温度とスパッタ時間を変化させて Co 薄膜を作製し、その成膜過程における膜の結晶構造、表面構造に及ぼす基板温度依存性について調べた。

2. 実験方法

多重磁極型高周波マグネトロンスパッタ装置の概略図を Fig. 1 に示す。ターゲット表面上の磁束密度の増加を図るために通常の磁束内蔵式平板マグネトロンのターゲット外部に N 極、S 極を交互にして永久磁石を配置した。高周波

Fig. 1 Schematic diagram of the RF magnetron sputtering system with multipolar magnetic plasma confinement.

(13.56 MHz) 電力はマッチング回路を介してターゲットに印加している。永久磁石には Sm-Co 磁石を用いた。排気系は、液体窒素トラップ、ターボ分子ポンプおよびロータリーポンプから構成されている。槽内の最終到達圧力は 4.7×10^{-5} Pa 以下であった。ターゲットに Co (純度 99.99%, 直径 100 mm, 厚さ 5 mm) を用いた。基板として n-Si(100) 基板 (大きさ 15 mm × 15 mm, 厚さ 1 mm) を用いた。基板加熱ヒータの温度 (以下、基板温度と称する) を室温と 400 °C に設定した。スパッタガス、ガス流量、ターゲット-基板間距離、高周波電力、スパッタガス圧力は、Ar ガス, 10 sccm, 40 mm, 100 W, 8.0×10^{-2} Pa と一定とし、スパッタ時間を 15 sec ~ 2400 sec と変化させ Co 薄膜を作製した。堆積膜の膜厚は多重干渉計を用いた。堆積膜の表面構造は原子間力顕微鏡 (AFM) により評価し、結晶粒径は原子間力顕微鏡 (AFM) の測定画像を白黒で 2 値化表示し、そのコント

* 平成19年11月15日 第48回真空に関する連合講演会で発表

^{*1} 広島工業大学工学部電子・光システム工学科 (〒731-5193 広島市佐伯区三宅 2-1-1)

ラスト比を任意に設定することにより平均表面粒径を求めた。結晶が異常に大きく一つの粒子として認識できないもの、更に極めて小さく粒子と認識できないものについては除いて算出した。結晶構造はX線回折法(XRD, CuK α)により評価した。

3. 実験結果及び考察

スパッタ時間が15 sec~2400 secに互って、膜表面のAFM像を観察した。Fig. 2に自乗平均粗さ(Rq)とスパッタ時間の関係を示す。室温で作製した膜のRqは、スパッタ時間とともに直線的に緩やかに増加するのに対し、400°Cでは、スパッタ時間が300~600 sec付近で急激に増加し、

Fig. 2 RMS roughness for Co films as a function of sputtering time.

その後緩やかに増加した。スパッタ時間2400 secにおけるRqは、室温では1.18 nm, 400°Cでは5.58 nmであり、400°Cのほうが約5倍ほど大きくなるのが観測された。Fig. 3, 4に室温と400°Cで作製した膜の各スパッタ時間におけるAFM画像を示す。Fig. 3(a)から(d)に示すように、室温で作製した膜の表面の凸部分がスパッタ時間にかかわらず鋭く尖った形状を保ちながら膜が成長している。一方、400°Cで作製した膜は、スパッタ時間の短い初期段階では、室温と同様に凸部分が鋭く尖った形状をしているが(Fig. 4(a)), 時間の経過とともに丸みを帯びた形状に変わり(Fig. 4(c)), 結晶粒径も大きくなっている。スパッタ時間2400 secにおける結晶粒径は、室温では36.1 nm, 400°Cでは58.6 nmであった。室温と比べて400°Cの膜のほうが約1.5倍大きくなった。高い基板温度を加えることで自己拡散や表面拡散が促進され、結晶粒径が大きく、丸みを帯びた凹凸の大きな膜となったと考えられる。基板温度400°CはThornton⁶⁾によれば、 $T_s/T_m = 0.38$ (T_s : 基板温度, T_m : ターゲット材料の融点)となり、ゾーン2に分類される。ゾーン2では、表面拡散により膜表面は平坦化されるとあり、実験結果と異なる。この差異についての考察は、今後の課題としたい。

Fig. 5に室温と400°Cで作製した薄膜のX線回折パターンを示す。測定試料の膜厚は室温の場合が164 nm, 400°Cの場合が240 nmであり、スパッタ時間は共に2400 secである。室温で作製した膜の $2\theta = 68^\circ$ におけるピークは、基板のSiウェハからのSi(400)面に起因するものである。室温と400

Fig. 3 Surface morphology of the Co films deposited at room temperature observed by AFM: (a) 60 sec; (b) 300 sec; (c) 1200 sec; (d) 2400 sec.

Fig. 4 Surface morphology of the Co films deposited at 400°C observed by AFM: (a) 60 sec; (b) 300 sec; (c) 1200 sec; (d) 2400 sec.

Fig. 5 X-ray diffraction patterns of the Co films prepared at different substrate temperatures.

°Cで作製した両方の薄膜からCo(002)面のピークが観測された。室温と比べて、結晶粒径が大きく、凹凸が大きい表面形状を持つ400°Cの膜の方が、Co(002)面により強く配向していることがわかった。

4. ま と め

多重磁極型高周波マグネトロンスパッタ法を用いて、低圧力下 (8×10^{-2} Pa) で Si 基板に Co 薄膜を作製した。表面形状は、基板温度が室温では鋭く尖った形状を保ちながら成長するのに対し、400°Cでは凹凸が大きく、結晶粒径の大きい丸みを帯びた形状となった。結晶構造においても400°Cで作製した膜の方がCo(002)面に、より強く配向することがわかった。

〔文 献〕

- 1) K. Kawabata, T. Tanaka, A. Kitabatake, K. Yamada, Y. Mikami, H. Kajioka and T. Toiyama: J. Vac. Sci. Technol., **A19** (2001) 1438.
- 2) T. Tanaka, K. Kawabata and A. Kitabatake: J. Vac. Sci. Technol., **A18** (2000) 1649.
- 3) K. Kawai, K. Kawabata and S. Honda: J. Magn. Soc. Jpn., **28** (2004) 991.
- 4) M. Harada, K. Kawai, T. Tanaka, K. Kawabata and H. Kajioka: Shinku, **46** (2003) 141.
- 5) H. Kobayashi: *Supatta Hakumaku* (Nikkan Kogyo Shimbun Ltd., Tokyo, 2001) 61 [in Japanese].
- 6) J. A. Thornton: J. Vac. Sci. Technol., **11** (1974) 666.