スパッタリングプラズマの高精度解析* —レーザー誘起蛍光法によるプラズマ診断—

佐々木 浩 —*1

Precise Analysis of Sputtering Plasmas —Diagnostics by Laser-Induced Fluorescence—

Koichi SASAKI

Plasma Nanotechnology Research Center, Nagoya University, Nagoya 464-8604, Japan

(Received August 31, 2009, Accepted September 14, 2009)

This review article reports analyses of magnetron sputtering plasmas based on precise diagnostics by laser-induced fluorescence imaging spectroscopy. We show two-dimensional distribution of a radical density, anomalous ionization of metal atoms in high-pressure magnetron sputtering discharges, effects of oxidation reactions in a reactive sputtering process for depositing a YBaCuO superconducting film, and the thermalization process of Fe atoms ejected from the target.

1. はじめに

マグネトロンスパッタリングプラズマを用いた成膜技術は、数あるプラズマプロセス技術の中でも最も確立された技術と言えるのではないだろうか。大規模集積回路の製造工程で重要なプラズマドライエッチング技術の先行きに不透明感が強まり、プラズマの内部状態の科学的理解に基づくプロセス開発の重要性が叫ばれて、プロセス研究者とプラズマ研究者が協力する研究体制が構築されるようになったのは15年ほど前と考えられる。その後ほどなくして、この研究の方法論は、プラズマ CVD の分野にも拡大した。しかしながら、スパッタリングプラズマの場合には、プラズマ研究者とプロセス研究者の協力体制はあまり強力には構築されなかったと思われる。これは、スパッタリング成膜技術が比較的良好に確立されていて、先行きに不安感をもたらす技術課題が声高には挙げられていなかったこと、および、プラズマ研究者からみた場合、エッチングプラズマと CVD プラズマは複雑で研究しがいがありそうに見えたのに対し、スパッタリングプラズマは単純そうで研究対象としての手ごたえがいま一つと感じられたことに起因しているのではないかと筆者は考えている。

本稿では、レーザー誘起蛍光法をスパッタリングプラズマに適用し、プラズマ中でのラジカル密度分布、イオン化過程、酸化反応過程、および、スパッタ放出粒子の速度緩和過程を詳細に調べた実験結果を紹介する。レーザー誘起蛍光法のような高精度なプラズマ診断技術を適用してみると、一見単純に見えるスパッタリングプラズマも意外に複雑であり、研究対象として十分に手ごたえがあることが分かってきた。マグネトロンスパッタリングは実用上最も重要なプラズマ堆積

技術であると考えられ、その詳細な解析は、より高度なプロセス技術の進展に寄与するものと考ええる。

2. レーザー誘起蛍光法の原理およびスパッタリングプラズマへの適用

レーザー誘起蛍光法は、原子・分子のエネルギー準位間の差エネルギーに同調した光子エネルギーをもつレーザー光により非発光状態にある原子・分子を励起し、励起状態の発する自然放射光（レーザー誘起蛍光）を受信する方式である。プラズマの場合には、ほとんどの粒子は非発光の基底状態にあり、プラズマから自然に放射される発光の強度はプラズマ中の粒子密度を反映しない。レーザー誘起蛍光法を用いて基底状態の粒子を強制的に発光させると、その強度は基底状態の粒子密度に比例するので、薄膜の堆積前駆体と目されるラジカルにレーザー誘起蛍光法を適用し、その密度を調べれば、薄膜の堆積機構を研究することができる。

レーザー誘起蛍光法の実形では、細いビーム状のレーザー光が用いられ、レーザービームの光路上の1点からのレーザー誘起蛍光が観測される。この方法を用いると、観測点における局所的なラジカル密度分布が求められる。このようにして得られる空間分解能（局所計測性）は、レーザー誘起蛍光法の利点の一つに挙げられてきた。しかし、このことは逆に、プラズマ中のラジカル密度の空間分布を得るためには、測定点を掃引しつつ多数回の測定を繰り返す必要があることを意味する。精密な光学調整を必要とするレーザー誘起蛍光法で測定点を掃引するのは容易な作業でない。スパッタリングプラズマでは、堆積前駆体がターゲットから放出されて基板に輸送され、また、マグネロン放電の場合にはプラズマ自身もターゲット付近に局在するので、空間分布が強く、1点のみでの局所計測では意味のある実験結果が得られにくい。

Fig. 1 は、レーザー誘起蛍光法を2次元化し、マグネトロンスパッタリングプラズマに適用した例を示している^{1,2)}。Fig. 1 の方式では、波長可変レーザーのビーム形状をシート状（幅が広く厚さの薄い形状）に整形し、スパッタリング源前面のプラズマ空間に様に照射する。このような光学配置

* 平成20年9月10日 第30回真空展 真空トピックスにおいて講演

*1 名古屋大学プラズマナノ工学研究センター（〒464-8603 愛知県名古屋市中区千種区不老町）
現所属：北海道大学大学院工学研究院量子理工学部門（〒060-8628 札幌市北区北13条西8丁目）

Fig. 1 Experimental setup of laser-induced fluorescence imaging spectroscopy for diagnostics of magnetron sputtering plasmas.

の元、レーザー光の波長を検出したい粒子のエネルギー準位の差エネルギーに同調すると、シート状レーザービームの上にレーザー誘起蛍光の2次元濃淡像が形成されるが、それをICCDカメラで撮影することにより、ラジカル密度の2次元分布が取得できる。マグネトロンスパッタリングは軸対称系であるので、レーザービームが対象軸を通過するように設定すれば、その r - z 断面におけるラジカル密度分布の2次元像が得られる。1回の計測でラジカル密度の2次元（実質3次元）空間分布が得られ、実験データの収集効率が非常に高い。また、この方式はいわゆる「可視化」計測法であり、得られる結果はプラズマの内部状態に関する直観的理解を助け、プロセスの最適化に寄与する。

以下では、この方式を用いて得られたマグネトロンスパッタリングプラズマの診断結果を示す。Fig. 1において、マグネトロンスパッタリング源は実験用の小型装置で、ターゲットサイズは50 mmであり、磁石配置はコンベンショナルな同軸型である。Fig. 1には直流電源が描かれているが、必要に応じて高周波電源を用いた。

3. アルゴン放電チタンスパッタリングにおけるチタン原子およびチタンイオンの密度分布

3.1 レーザー誘起蛍光法によるラジカル密度の可視化

放電ガスに純アルゴンを用い、チタンをターゲットに用いた場合に観測されたチタン原子密度の2次元空間分布をFig. 2に示す²⁾。図上部の四角はターゲットの位置を表している。電源には直流電源を用い、その電力は75 Wとした。ガス圧が2.67 Paの場合、Fig. 2(a)に示すように、スパッタリングによりターゲットから放出したと考えられるチタン原子の輸送距離は比較的長く、ターゲットから5 cm以上離れた空間まで到達しているのに対し、ガス圧が13.3 Paの場合には、Fig. 2(b)に示すように、チタン原子はターゲットの近くに局在することが一目瞭然に理解できる。レーザー光強度のばらつきを補償するために100ショットのレーザーパルスに対する積算を行った場合でも、Fig. 2に示すひとつの測定結果を得るのに要する時間は僅かに10秒であるが、原形

Fig. 2 Two-dimensional distributions of Ti densities in magnetron sputtering plasmas produced at pressures of (a) 2.67 Pa (20 mTorr) and (b) 13.3 Pa (100 mTorr). The discharge power was fixed at 75 W.

型のレーザー誘起蛍光法により同等の測定結果を得るには最低でも1週間程度の時間を要すると考えられる。なお、Fig. 2はチタン原子密度の絶対値を示しているが、これは、ホローカソードランプを光源に用いた紫外吸収分光法によりレーザー誘起蛍光法の信号強度を較正することにより得たものである¹⁾。

3.2 高ガス圧放電によるイオン化の促進

マグネトロンスパッタリング成膜は、普通、1 Pa未満の放電ガス圧で実施される。低ガス圧では比較的高い成膜速度が得られ、かつ、低基板温度でも緻密な構造を有する薄膜が得られるため、スパッタリング成膜技術の特長が最も活かされる成膜条件であるとされている。これに対し、本節では、スパッタリングプラズマの放電ガス圧を高めることにより、スパッタリングにより放出されたチタン原子のイオン化率が異常に高まることを示す実験結果を紹介したい。

Fig. 3は、Fig. 2と同じ放電条件において測定されたチタンイオンの2次元空間分布を示している²⁾。ガス圧が2.67 Paの場合、Fig. 3(a)に示すように、チタンイオンの空間分布は比較的一様であり、その密度は低い。これに対し、放電

Fig. 3 Two-dimensional distributions of Ti^+ densities in magnetron sputtering plasmas produced at pressures of (a) 2.67 Pa (20 mTorr) and (b) 13.3 Pa (100 mTorr). The discharge power was fixed at 75 W.

ガス圧を13.3 Pa に高めると、Fig. 3(b)に示すように、ターゲットから4~5 cm 離れた下流部においてチタンイオンの密度が増加することが観測された。上流部分におけるチタンイオン密度の増加は比較的少なく、下流部分での密度増加が極めて顕著である。一方、Fig. 2 に示したチタン原子密度は、ガス圧の増加に伴い、上流部分で顕著に増加し、下流部分では逆に減少している。したがって、チタン原子に対するチタンイオンの密度比は、ターゲットからの距離に対して著しく変化する。

Fig. 3 に示したチタンイオン密度も、紫外吸収分光法による較正を経て絶対値化されているので、Fig. 2 および Fig. 3 から、チタン原子に対するチタンイオンの密度比を評価することができる。Fig. 4 は、チタン原子に対するチタンイオンの密度比の対称軸上1次元空間分布を様々な放電条件で図示したものである³⁾。Fig. 4(a)に示すように、放電ガス圧を一定として放電電力を増加しても、チタン原子およびチタンイオンの密度が共に増加し、チタンのイオン化率に変化はなかった。これに対し、Fig. 4(b)に示すように、放電電力を一定として放電ガス圧を増加すると、チタンのイオン化率

(a) 80 mTorr

(b) 75 W

Fig. 4 Ratio of the Ti^+ density to the Ti density, as a function of the distance from the target, observed at (a) various discharge powers and (b) various discharge pressures. The pressure and the power were fixed at 10.7 Pa (80 mTorr) and 75 W in (a) and (b), respectively.

に顕著な改善がみられた。イオン化率の改善はターゲットから4 cm 以上離れた下流部で生じることに特徴がある。下流部におけるチタン原子に対するチタンイオンの密度比は、ガス圧13.3 Pa において0.3に達している。中性粒子のフラックスは中性粒子の温度で決まる熱フラックスであるのに対し、イオンのフラックスは電子温度で決まるボームフラックスであることを考慮すると、チタン原子に対するチタンイオンの密度比が0.3の場合には、基板へのフラックスとしてはイオンが原子を上回り、イオンを主体とした成膜フラックスを得ることができる。

3.3 微細パターン内埋め込み成膜への応用

近年、大規模集積回路の多層配線形成プロセスなどにおける需要の高まりを背景に、微細パターン内部への埋め込みが可能な成膜技術の開発が重要視されている。スパッタリング成膜の場合には、堆積前駆体のイオン化率を高め、プラズマに対して負にバイアスされた基板へイオンを加速入射することにより微細パターン内部への成膜を可能とする技術（イオン化スパッタリング、IPVD）が盛んに研究されている。主流な方式は、プラズマ中に高周波アンテナを挿入してプラズマを加熱し、プラズマの電子密度および電子温度を高めるこ

とによりイオン化を促進しようとする方式である^{4,5)}。また、最近では、ヨーロッパを中心に、短パルス大電力スパッタリング放電により高いイオン化率を有するプラズマを得る方式への関心が高まっている^{6,7)}。これらの方式に比べ、13.3 Pa 以上の高いガス圧を用いる方式では、プラズマ源に一切の変更を加えることなく高いイオン化率を得ることができ、従来技術の延長線上として使用しやすい成膜技術であると考えられる。実際、レーザー誘起蛍光法で計測したチタンのイオン化率と微細トレンチ内部の成膜形状との比較が行われ、高いイオン化率が得られる高ガス圧放電を用い、ターゲット・基板間距離を長く設定すると、ボトムカバレッジの高い成膜形状が得られることが基礎実験によって示されており³⁾、大規模集積回路の配線形成プロセス用装置としての市販品もある⁸⁾。

3.4 高ガス圧放電におけるイオン化促進のメカニズム

Fig. 2～Fig. 4 の実験結果は従来型のマグネトロンスパッタリング源で得られたものであり、強い発光を発するプラズマ（即ち電子温度と電子密度の高いプラズマ）はターゲット前面に局在化している。それに関わらず、チタンイオンの密度がターゲットから4～5 cm 離れた下流部にピークを持つ点は極めて興味深い。Fig. 3(b) に示したチタンイオン密度の空間分布は、チタンイオンの生成領域がターゲット近傍でなくプラズマ下流部に存在することを示している。プラズマ下流部におけるチタンイオンの生成過程に関して、これまでに非常に詳細な研究を行ってきたが、残念ながら、そのメ

カニズムはいまだ解明されていない⁹⁾。高い放電ガス圧を用いるだけでスパッタリング放出チタンのイオン化率が高まるのは実用上重要だが、そのメカニズムが解明されれば、プラズマの最適制御に対してより進んだ指針が得られるものと考えられ、今後の研究課題である。

4. 反応性スパッタリングによる YBaCuO 高温超電導薄膜堆積過程の解明

4.1 YBaCuO 薄膜堆積におけるプラズマ診断の意義

この実験では、元素組成を $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_x$ に調整した粉末ターゲットを用い、高周波電源およびアルゴン・酸素混合ガスを放電に用いた。マグネトロンスパッタリングによる YBaCuO 超伝導薄膜の成膜は、比較的複雑な反応性スパッタリング成膜であり、その成膜メカニズムはもちろん、成膜に寄与する前駆体すら十分明らかになっていない^{10,11)}。レーザー誘起蛍光法を用いると、Y, Ba, Cu, YO, BaO, CuO の 2 次元密度分布を可視化することができる。これらの測定結果を比較することにより、プラズマ気相での化学反応過程や、良好な膜質が得られる成膜条件において基板に到達する活性種を明らかにすることができた¹²⁾。

4.2 YBaCuO スパッタリングにおけるラジカル密度

2 次元レーザー誘起蛍光法により、ターゲット前面の放電空間に存在する Y, Ba, および Cu 密度の空間分布を可視化した結果を Fig. 5 に示す。この実験では、マグネトロンスパッタリング源は鉛直下方より真空容器に挿入されており、

Fig. 5 Two dimensional distributions of Cu, Y, and Ba densities in magnetron sputtering plasmas employing a YBaCuO target and Ar/O₂ mixture gas with various flow ratio of O₂. The discharge power and the total pressure were 70 W and 53.3 Pa (400 mTorr), respectively.

各写真の下部に図示された四角がターゲットの位置を示している。高周波電力は70 W、放電ガス圧は53.3 Paであり、酸素の流量比は図中に示した。図から、Cu 密度は酸素分圧が高くてもあまり減少せず、ターゲットから離れた空間まで輸送されるのに対し、Ba および Y 密度は僅かな酸素を混合することによって著しく密度が低下し、ターゲットから離れた空間まで輸送されなくなることが明らかである。即ち、プラズマ気相における Y, Ba, および Cu の混合比率はターゲットからの距離に強く依存し、ターゲット・基板間隔を選ぶことによって基板に取り込む金属元素の組成比を制御できることがわかった。

Fig. 5 の密度分布から、ターゲットから 3 cm 離れた対称軸上における Y, Ba, および Cu 密度を抽出し、酸素流量比の関数としてプロットした結果を Fig. 6 に示す。酸素流量比に対する Cu 原子密度の減少傾向は緩やかであり、この程度の変化は、酸素流量比の増加に伴いプラズマ密度が減少するためスパッタリング放出 Cu 原子の数が低下する効果として説明可能と考えられる。これに対し、Y および Ba 密度の酸素流量比に対する減少は顕著で、特に Y 原子密度は、酸素流量比 1% において検出限界を下回る密度にまで低下した。Y および Ba 密度の減少はスパッタリング放出原子量の減少では説明できず、 $X + O_2 \rightarrow XO + O$ の気相酸化反応によるものと考えられる。実験結果から見て、酸化反応のレート係数は Y 原子に対して最も大きく、Cu 原子の酸化反応は無視できる程度であると考えられる。これらの結果は、Y および Ba の酸化反応が発熱反応であるのに対して Cu の酸化反応が吸熱反応であることから妥当であると考えられる。

Fig. 7 は、Fig. 5 および Fig. 6 と同じ放電条件において YO および BaO の 2 次元密度分布を 2 次元レーザー誘起蛍光法で測定し、ターゲットから 3 cm 離れた対称軸上における値をプロットしたものである。CuO 密度は全実験条件において検出限界を下回った。YO および BaO 密度は、酸素流量比が 0 から 10% の間で酸素流量比に対して増加した。酸素流量の増加に伴いプラズマ密度は低下し、スパッタリン

グ放出粒子の量は減少すると考えられるので、この結果は明らかに、 $X + O_2 \rightarrow XO + O$ の酸化反応による YO および BaO の生成によるものと考えられる。1% 未満の酸素流量比において YO の生成は BaO の生成より顕著であり、これは酸化反応が Y に対して最も顕著であることを示唆する Fig. 6 の結果と矛盾しない。10% 以上の酸素流量比で YO および BaO 密度が減少するのは、Cu 密度が同じ酸素流量比領域において低下するのと同様に、プラズマ密度の減少によりスパッタリング放出粒子量が減少するためと考えられる。このように、多種のラジカル密度の空間分布を計測することにより、プラズマ気相における酸化反応の様子を理解し、成膜条件を変えた場合に基板に到達する活性種フラックスの比がどのように変化するかを把握した上で成膜条件を選択することができるようになる。

4.3 YBaCuO 超伝導薄膜の堆積メカニズム

MgO 基板をターゲットから 3 cm の位置に設置し、ランブヒータにより 670°C に加熱して成膜を行った¹²⁾。得られた YBaCuO 薄膜の特性を結晶性と超伝導転移温度で評価し、上に述べたプラズマ気相の診断結果と比較した。放電電力を 70 W、酸素流量比を 50% に固定し、全ガス圧を変化させた成膜結果では、全ガス圧 26.7 Pa 未満ではアモルファス膜となり超伝導転移は生じず、全ガス圧 26.7 Pa 以上で超伝導に転移する結晶性薄膜が得られた。最も高い結晶性および超伝導転移温度 (86 K) は、全ガス圧が 66.7–80.0 Pa のときに得られた。一方、放電電力を 70 W、全ガス圧を 53.3 Pa に固定し、酸素流量比を変化させた成膜結果では、最も結晶性の高い薄膜は酸素流量比が 50–70% のときに得られた。これらの成膜結果を Fig. 5–Fig. 7 と比較すると、良好な結晶性薄膜が得られた放電条件で基板に到達しているのは、Cu, YO, および BaO であることが分かり、これらが YBaCuO 薄膜の成膜前駆体であると考えられる。ただし、これらの成膜前駆体のフラックス比と成膜結果との相関はあまり高くない。放電電力を 70 W、酸素流量比を 50% に固定し、全ガス

Fig. 6 Relationship between the flow ratio of O₂ in Ar/O₂ gas mixture and the Y, Ba, and Cu densities at a distance of 3 cm from the target. The discharge power and the total pressure were 70 W and 53.3 Pa (400 mTorr), respectively.

Fig. 7 Relationship between the flow ratio of O₂ in Ar/O₂ gas mixture and the YO and BaO densities at a distance of 3 cm from the target. The discharge power and the total pressure were 70 W and 53.3 Pa (400 mTorr), respectively. Note that the CuO density was below the detection limit at all discharge conditions.

圧を変化させた成膜で得られた薄膜の元素組成比を分析すると、全ガス圧が40.0 Pa 以上の場合に Y : Ba : Cu = 1 : 2 : 3 の薄膜が得られており、元素組成比はガス圧にほとんど依存しなかった。これに対し、基板に到達する Cu, YO, BaO のフラックス比は2倍程度の範囲で変化している。即ち、ある程度適切な割合で前駆体が供給されれば、YBaCuO 薄膜の結晶成長は自己整合的に進行するものと考えられる。全ガス圧が26.7 Pa 未満でアモルファス膜となった理由は、酸化物ターゲットを用いたスパッタリングにおいて良く知られているように、ターゲット面上で酸素負イオンが生成され¹³⁾、ターゲット前面のシース電圧で加速されて基板に入射し、YBaCuO 薄膜の結晶構造を破壊するためと考えられる。

5. スパッタリング放出鉄原子の速度緩和過程

5.1 速度分布計測の原理

素過程としてのスパッタリング現象では、ターゲットから放出された原子は熱速度を超える速度を持ってターゲットから遠ざかる方向に運動するものと考えられている。プラズマ環境では放電ガスが存在し、スパッタリング放出粒子は放電ガスと衝突するので、ターゲットから離れる方向へ輸送される過程でその速度は緩和する。スパッタリング放出粒子の速度緩和過程に関しては、過去に1次元計測が行われた例があるものの¹⁵⁾、その詳細は依然未解明である。

レーザー誘起蛍光法において、検出対象粒子のドップラー広がり幅よりも線幅の狭い波長可変レーザーを光源に用い、レーザー光の強度を飽和広がりが生じない強度に抑制すると、ドップラーシフトを経てレーザー光波長を共鳴と感じる速度を持つ粒子のみが励起される。したがって、レーザー光の波長を掃引して測定を繰り返したときに得られるレーザー誘起蛍光強度の変化（励起スペクトル）は、レーザー光の光軸に沿う方向における検出対象粒子の速度分布関数を表す。2次元レーザー誘起蛍光法を用いて各レーザー波長におけるレーザー誘起蛍光の2次元像を撮影し、ICCD カメラの各ピクセルにおいて励起スペクトルを求めれば、スパッタリング放出粒子の速度分布関数の2次元空間分布が得られる。

5.2 スパッタリング放出鉄原子の速度分布関数

ターゲットに鉄を用い、放電ガスに純アルゴンを用いた場合に、スパッタリング放出鉄原子の速度分布関数を計測した¹⁶⁾。Fig. 8(a)は、放電ガス圧が0.40 Pa の場合に、放電対称軸上でターゲットからの距離が様々な位置におけるターゲット表面に垂直な方向の鉄原子の速度分布関数を示している。横軸（速度軸）の正は、鉄原子がターゲットから離れる方向の速度を有していることを表している。図に示されているように、ターゲット近傍では、速度分布関数の広がり幅が広く、また、その分布は速度ゼロの縦軸に対して非対象である。このことは、ターゲット近傍には高いエネルギーをもった鉄原子が多く存在し、ターゲットから離れる方向の平均速度を有していることを示している。ターゲットからの距離が離れると、速度分布関数は速度ゼロの縦軸に対して対象となる。このことは、下流領域では鉄原子のエネルギーが低下し、平均速度がゼロとなることを示し、輸送過程において衝

Fig. 8 Velocity distribution functions of Fe observed at (a) various distances from the target and (b) various discharge pressures. The pressure in (a) was 0.40 Pa (3 mTorr) and the distance from the target in (b) was 4 mm.

突を経て速度分布関数が熱化することを表している。

Fig. 8(b)は、ターゲットから4 mm離れた放電対称軸上での鉄原子の速度分布関数を3通りのガス圧で測定した結果を示している。ガス圧が高くなるにつれて速度分布関数が熱化する様子が示されており、ガス圧が2.67 Pa の場合には、ターゲットから4 mm 輸送される間に速度分布関数の熱化が生じていることが分かる。

5.3 スパッタリング放出鉄原子の速度緩和

Fig. 8 に示した速度分布関数の1次のモーメントを計算すると、スパッタリング放出鉄原子の平均速度が求まる。ターゲットに垂直方向およびターゲットに平行方向の速度分布関数を ICCD カメラの各ピクセルにおいて求め、それらの1次のモーメントを計算し、平均速度の2次元マップとして表示した結果を Fig. 9 に示す¹⁶⁾。平均速度の大きさは、画像の色とベクトル矢印の長さで表現されており、平均速度の方向はベクトル矢印の方向で表現されている。Fig. 9(a)に示すように、ガス圧力が0.40 Pa の場合には、ターゲット近傍領域において鉄原子は最大約3.6 km/s の平均速度を有しており、ターゲット中心から外側に向かって輸送されていることが明瞭に分かる。ターゲットからの距離が遠ざかると、鉄原子の平均速度は徐々に低下し、ターゲットから70 mm 離

Fig. 9 Two-dimensional maps of the average velocity of Fe observed at discharge pressures of (a) 0.40 Pa (3 mTorr) and (b) 2.67 Pa (20 mTorr).

れた領域では平均速度はほぼゼロとなって、速度分布関数は熱化している。一方、Fig. 9(b)に示すように、ガス圧が2.67 Paの場合には、観測領域のほぼ全域において鉄原子の平均速度はゼロである。即ち、観測領域の全域で鉄原子の速度分布関数は熱化している。

ここでは示さないが、Fig. 8に示した速度分布関数の2次のモーメントを計算すれば、スパッタリング放出鉄原子の実効温度が求められ、その空間分布もマップの形で表示できる。その結果からも、放電ガス圧が低い時にはターゲット近傍に高エネルギーの鉄原子が存在し、ターゲットから遠ざかるにつれて鉄原子のエネルギーが緩和すること、および、ガス圧が高い場合にはターゲット近傍においても鉄原子のエネルギーが低下していることが理解できる¹⁶⁾。スパッタリング放出粒子のエネルギーは、成膜特性に正の効果を及ぼす場合もあれば負の効果(ダメージ)を及ぼす場合もある。図9に示した実験結果をもとに、それぞれの成膜に適したガス圧およびターゲット・基板間距離を選択することが可能であると考えられる。

6. おわりに

はじめに述べたように、スパッタリング成膜の分野では、プラズマエッチングやプラズマCVDに比べ、プロセス研究者とプラズマ研究者の間の協力関係が薄弱であったと考えら

れる。しかし、本稿で示したように、十分に確立した感のあるスパッタリング成膜の分野でも、先進的プラズマ診断技術とプラズマ科学の視点に基づく研究手法の導入により、スパッタリングプラズマの内部状態に関する新しい理解が生まれ¹⁷⁻²¹⁾、新しい成膜技術が開拓される可能性がある。本稿をきっかけに、スパッタリングプロセスの研究者とプラズマ研究者の連携が促進されることを願うものである。

謝辞

柴垣寛治、ナファリザル、および、深谷康太の各氏の本研究への貢献に謝意を表する。また、第3章で述べた実験結果はキャノンアネルバとの共同研究の成果であり、第4章および第5章で述べた実験結果は名古屋大学電気系教室が運営した21世紀COEプログラム「先端プラズマ科学が開くナノ情報デバイス」の成果であることを付記する。

〔文 献〕

- 1) N. Nafarizal, N. Takada, K. Nakamura, T. Yoshida and K. Sasaki: *Trans. Mater. Res. Soc. Jpn.*, **30** (2005) 299.
- 2) N. Nafarizal, N. Takada, K. Shibagaki, K. Nakamura, Y. Sago and K. Sasaki: *Jpn. J. Appl. Phys.*, **44** (2005) L737.
- 3) N. Nafarizal, N. Takada, K. Nakamura, Y. Sago and K. Sasaki: *J. Vac. Sci. Technol. A*, **24** (2006) 2206.
- 4) J. Hopwood: *Phys. Plasmas*, **5** (1998) 1624.
- 5) S. M. Rossnagel: *IBM J. Res. Develop.*, **42** (1999) 163.
- 6) J. T. Gudmundsson, J. Alami and U. Helmersson: *Appl. Phys. Lett.*, **78** (2001) 3427.
- 7) J. Bohlmark, J. Alami, C. Christou, A. P. Ehiassarian and U. Helmersson: *J. Vac. Sci. Technol. A*, **23** (2005) 18.
- 8) S. Wickramanayaka, E. Watanabe, H. Nagahama and M. Kobayashi: *Proc. 2002 Semiconductor Equipment and Materials International (SEMI)*, San Francisco, USA, 2002.
- 9) N. Nafarizal, N. Takada and K. Sasaki: *Jpn. J. Appl. Phys.*, **48** (2009) 126003.
- 10) H. C. Li, G. Linker, F. Ratzal, R. Smithey and J. Greer: *Appl. Phys. Lett.*, **80** (1988) 1098.
- 11) T. Arikawa, H. Itozaki, K. Harada, K. Higaki, S. Tanaka and S. Yazu: *Jpn. J. Appl. Phys.*, **29** (1999) L2199.
- 12) K. Fukaya, K. Sasaki, J. Gao, T. Kimura, M. Watanabe, M. Inoue, A. Fujimaki and H. Sugai: *Thin Solid Films*, **517** (2009) 2762.
- 13) J. P. Krumme, R. A. A. Hack and I. J. M. M. Raaijmakers: *J. Appl. Phys.*, **70** (1991) 6743.
- 14) A. Goehlich, D. Gillmann and H. F. Döbele: *Nucl. Instrum. Meth. Phys. Res. B*, **164** (2000) 834.
- 15) W. Z. Park, T. Eguchi, C. Honda, K. Muraoka, Y. Yamagata, B. W. James, M. Maeda and M. Akazaki: *Appl. Phys. Lett.*, **58** (1991) 2564.
- 16) K. Shibagaki, N. Nafarizal and K. Sasaki: *J. Appl. Phys.*, **98** (2005) 043310.
- 17) J. Gao, N. Nafarizal and K. Sasaki: *J. Vac. Sci. Technol. A*, **24** (2006) 2100.
- 18) N. Nafarizal and K. Sasaki: *J. Vac. Sci. Technol. A*, **25** (2007) 308.
- 19) N. Nafarizal, N. Takada and K. Sasaki: *J. Phys. D: Appl. Phys.*, **41** (2008) 035206.
- 20) K. Sasaki, N. Nafarizal, J.-S. Gao and K. Shibagaki: *Vacuum*, **83** (2008) 463.
- 21) K. Fukaya, A. Tabata and K. Sasaki: *Jpn. J. Appl. Phys.*, **48** (2009) 035507.