ターゲットのエロージョン分布を考慮した
スパッタ膜の成長速度解析*南部 健一*¹, 森本 保*², 後藤 裕一*³Effects of Target Erosion on the Growth Rate of Films
Fabricated by the Sputtering Method

Kenichi NANBU, Tamotsu MORIMOTO and Yuichi GOTO

The target of a sputtering apparatus usually suffers from nonuniform erosion due to incident ions. The growth rate of deposited films then depends on the distribution of the erosion rate on the target. The test multiparticle method, which is a combination of the Monte Carlo direct simulation method and the test-particle method, is used to calculate atomic motions and depositions in an axisymmetrical sputtering chamber. The effect of the erosion rate on the thickness distribution of the films is clarified in the pressure range of 0.1–1 Pa by having recourse to the obtained density and flow fields of the sputtered atoms.

Key Words: Rarefied Gas, Numerical Analysis, Sputtering Method, Thin Film, Monte Carlo Method

1. 緒 言

スパッタ法は、高エネルギーのイオンを固体表面(ターゲット)に衝突させ、それによってはじき出された原子または分子を、ターゲットに対向する基板上に付着させ薄膜を作成する方法である。現在、電子工業、機械工業において広く用いられている。スパッタ法の特徴を他の薄膜作成法の一つである真空蒸着法と比べると、絶縁物の膜を作れること、被膜の付着力が強いことなど多くの長所を有している。さらに、近年、スパッタ法による膜の作成が適している特殊な薄膜の需要が多くなり、スパッタ法の重要性は飛躍的に増大している⁽¹⁾。

作成された薄膜の品質を決める膜の結晶性や膜厚の均一性などは、基板に入射するスパッタされた原子の速度や数に依存するため、膜の品質を予測するには、スパッタ装置内でのスパッタ原子の運動を解析することが必要となる。

筆者ら⁽²⁾は以前に、ターゲットのエロージョン分布が一様な場合について膜成長過程を数値解析した。しかし、イオンの数密度場が非一様なことから、通常、ターゲットのエロージョン分布も非一様である。本報では、膜成長速度、膜厚分布に及ぼすターゲットのエロージョ

ン分布の影響を明らかにする。なお、エロージョン分布はターゲットの磁場設計により任意に選べる。スパッタ原子の挙動は、モンテカルロ直接法⁽³⁾とテスト粒子法を組み合わせたテスト多粒子法により解析した。

2. 解法の概要

2.1 粒子間衝突のモデル化 スパッタ装置内の圧力 p は 1 Pa 以下である。スパッタ粒子の平均自由行程 λ_s (mm) を見積ると $8/p$ (Pa) であるから、1 Pa で $\lambda_s=8$ mm であり、明らかに分子運動論的アプローチが必要である。

ここで取り扱うスパッタ装置のモデルを図1に示す。チャンバーは半径 R の円筒である。基板は半径 a 、ターゲットは半径 b の円板で、チャンバーの中心軸と円板の中心が一致し、チャンバー上下面、基板、ターゲットはすべて中心軸に垂直とする。また基板とターゲット間の距離を h とする。よってスパッタ粒子の流れは軸対称流となる。

このチャンバー内には中性のアルゴン原子 (Ar)、アルゴンイオン (Ar^+)、電子 (e^-)、スパッタ原子 (Al) が存在する。ここではターゲットはアルミニウムとしている。しかし、グロー放電中のイオン含有率は $10^{-3} \sim 10^{-5}$ であり非常に低く、放電空間は弱電離プラズマである。よって、 Ar^+ 、 e^- とスパッタされた粒子の数密度は、バックグラウンドのアルゴンに比べると非常に小さい。よって衝突は $\text{Ar}-\text{Ar}$ 、 $\text{Ar}-\text{Ar}^+$ 、 $\text{Ar}-e^-$ 、 $\text{Ar}-\text{Al}$ の

* 原稿受付 平成3年3月25日。

¹ 正員、東北大学流体科学研究所 (〒980 仙台市青葉区片平2-1-1)。² 学生員、東北大学大学院。³ 東北大学学生。

4通りを考慮すれば良いことになる。Ar-Ar⁺, Ar-e⁻の衝突と、陰極と陽極間の電場によってAr⁺とe⁻の速度分布関数が決まる。Ar⁺のターゲット近傍での速度分布関数は、ターゲットのエロージョン分布と放出されるスパッタ粒子の速度分布関数を支配する。しかしここでは、エロージョン分布とスパッタ粒子の速度分布関数を仮定して計算をおこなうので、Ar-Ar⁺, Ar-e⁻の衝突は考えない。また、Ar-Arの衝突は、チャンバー内の流れを支配するものであるが、本報ではArの速度分布関数を平衡分布と仮定し、この衝突も考慮しない。従って、Ar-Alの衝突だけを考慮して行く。

2.2 ターゲットからの原子発射 スパッタ原子の発射条件を決めるエロージョン分布は、基板上での膜成長速度に影響を及ぼす。この分布は企業秘密に属し、明かでない。ここでは次のようなエロージョン分布のモデルを考える。ターゲットから単位時間、単位面積当たり発射される原子の数 $\dot{F}_0$ は、ターゲットの半径位置の関数であり次式で与えられるものとする。

$$\dot{F}_0(\hat{r}) = \dot{F}_{\max} f(\hat{r}) \quad (1)$$

ただし $\hat{r} = r/b$ で、 $f(\hat{r})$ は

$$f(\hat{r}) = \left(1 + \frac{n}{m}\right)^m \left(1 + \frac{m}{n}\right)^n \hat{r}^m (1 - \hat{r})^n$$

ここに m, n は整数。 f の最大値は1である。したがって、 $\dot{F}_0(\hat{r})$ は $\hat{r} = m/(m+n)$ のとき最大値 $\dot{F}_{\max}$ をとる。 $t\dot{F}_{\max}(t)$ に比例する最大エロージョン深さを $e_{\max}(t)$ と置くと、エロージョン面の形状 $e(r, t)$ は

$$e(r, t) = e_{\max}(t) f(\hat{r}) \quad (2)$$

もちろん $t=0$ で $e=0$ である。膜成長は、エロージョン面の形状 $e(r, t)$ とエロージョン分布 $f(\hat{r})$ の両者の影響を受ける。エロージョン面の形状は時間によって変化するが、一枚の薄膜を作る間の変化は無視できるので、膜

図 1 スパッタ装置のモデル

成長の計算はエロージョン面の形状を一定にして行えばよい。

一つの粒子が、 $(r, r+dr)$ のリング領域からスパッタされる確率 $g(r)dr$ は、

$$g(r)dr = \frac{\dot{F}_0 2\pi r dr}{\int_0^b \dot{F}_0 2\pi r dr} \propto \hat{r} f(\hat{r}) d\hat{r}$$

g は、 $\hat{r} = (m+1)/(m+n+1)$ で最大値 $g_{\max}$ をとる。よって、

$$\frac{g}{g_{\max}} = \left(1 + \frac{n}{m+1}\right)^{m+1} \left(1 + \frac{m+1}{n}\right)^n \hat{r}^{m+1} (1 - \hat{r})^n$$

スパッタ粒子の発射位置 $\hat{r}$ は棄却法を用いて上式から決定する。すなわち試行値を $\hat{r} = U$ (U は0~1の乱数) とする。これを上式に代入し $g/g_{\max}$ を求め、別の乱数 U' と比較し $U' < g/g_{\max}$ なら $\hat{r}$ の試行値を採用する。こうして求められた発射点 $P(x, y, z)$ は、

$$x = -e(r, t)$$

$$y = r, z = 0$$

図2の点Pで接線(Y)と法線(X)を考える。スパッタ原子は局所的な余弦則にしたがって発射されるとすると、X, Y, z方向の速度成分は、

$$c_X = \sqrt{-2R_s T_0 \ln U}, \quad c_Y = B \cos \phi, \quad c_z = B \sin \phi$$

ただし

$$B = \sqrt{-2R_s T_0 \ln U}, \phi = 2\pi U, T_0 = E_0/2k$$

ここに、 R_s はスパッタ原子の気体定数、 U は0~1の一樣乱数、 E_0 はスパッタ原子の平均エネルギー、 k はボルツマン定数である。

スパッタ原子の速度の x, y 成分は

$$c_x = c_X \cos \theta - c_Y \sin \theta$$

$$c_y = c_X \sin \theta + c_Y \cos \theta \quad (3)$$

ここに $\tan \theta = -\partial e / \partial y$ 。

図 2 エロージョン面からの原子発射

2.3 原子間衝突のシミュレーション スパッタ粒子 (Al) と、バックグラウンドガス分子 (Ar) の衝突の取り扱いを、順を追って説明する。

2.3.1 原子模型とクヌーセン数 アルゴン原子は半径が d_A の、スパッタ原子 (Al) は半径が d_s の剛体球とする。

$$d_{sA} = \frac{d_A + d_s}{2}$$

とおくと、Al と Ar の全衝突断面積 σ_T は πd_{sA}^2 となる。スパッタ原子の d_s は不明なので本報では $d_s = d_A$ と仮定した。しかし、計算に必要なのは d_s, d_A の個々の値ではなく、次のように定義されたクヌーセン数の値である。スパッタ原子の平均自由行程 λ_s は、アルゴン原子だけでなくスパッタ原子も平衡状態にあると仮定すると

$$\lambda_s = \sqrt{\frac{m_A}{m_s + m_A}} \frac{1}{n_A \sigma_T} \quad (4)$$

となる。ここで、 n_A はアルゴンの数密度、 m_A はアルゴン原子の質量、 m_s はスパッタ原子の質量である。代表長さとして、基板とターゲット間の距離 h をとり、クヌーセン数を

$$Kn = \frac{\lambda_s}{h} = \sqrt{\frac{m_A}{m_s + m_A}} \frac{kT_A}{\pi d_{sA}^2 p_A h} \quad (5)$$

で定義する。 p_A, T_A は、アルゴンの圧力と温度である。計算はすべて無次元形で行うので、 $d_s = d_A$ の仮定は Kn の計算にのみ効いてくる。すなわち、もし Kn を与えて計算を行うなら d_s, d_A の値は unnecessary になる。

2.3.2 テスト多粒子法 ここで述べるテスト多粒子法は、モンテカルロ直接法⁽³⁾で分子間衝突を Nanbu 法⁽⁴⁾で取り扱う方法と類似している。従来のテスト粒子法と異なる点は、同時に多数のテスト粒子を発生させそれを追跡していくので、非定常問題を解く際に、定常状態の判別が容易であり、また三次元的な流れ場の把握も容易に出来る。まずタイムステップ Δt ごとに一定数の原子をターゲットから発射させる。つぎに、モンテカルロ直接法と同様に Δt だけ原子を移動し、その後スパッタ原子とアルゴン原子の衝突を計算する。流れの軸対称性から原子の座標と速度は移動後変換される。⁽⁵⁾

a. 衝突確率 スパッタ原子が Δt の間に衝突する確率は、

$$P_s = n_A \sigma_T \langle g \rangle \Delta t \quad (6)$$

ここで $\langle g \rangle$ は、アルゴンガスのマクスウェル分布 $f(c_A)$ で平均化された Al-Ar の相対速度の大きさであり

$$\begin{aligned} \langle g \rangle &= \int |c_s - c_A| f(c_A) dc_A \\ &= \sqrt{\frac{2kT_A}{m_A}} \left[\left(\hat{c}_s + \frac{1}{2\hat{c}_s} \right) \text{erf} \hat{c}_s + \frac{1}{\sqrt{\pi}} \exp(-\hat{c}_s^2) \right] \quad (7) \end{aligned}$$

ただし $\hat{c}_s = c_s / \sqrt{2R_A T_A}$ で、 R_A はアルゴンガスの気体定数。 P_s は定数ではなくスパッタ原子ごとに変わる。

ターゲットから発射された直後のスパッタ原子の平均エネルギー E_0 は 10 eV のオーダーであり、また $T_A \sim 300$ K であるので $\hat{c}_s \gg 1$ であることがわかる。つまり、発射直後では式 (7) より $\langle g \rangle = c_s$ となる。このとき $\langle g \rangle$ の平均は

$$\langle \bar{g} \rangle = \bar{c}_s = \sqrt{2E_0/m_s} \quad (8)$$

ここで、式 (8) を式 (6) に代入すると、衝突確率の最大値 $(P_s)_{\max}$ が求まる。タイムステップ Δt は分離の原理⁽³⁾から $(P_s)_{\max}$ が 0.2 に等しくなるように選んだ。

b. スパッタ原子の衝突相手の決定 乱数 U を一つ呼び出し、 $U < P_s$ なら Ar に対するマクスウェル分布から Ar 原子の速度 c_A をサンプリングする。この原子がスパッタ原子の衝突相手である。原子模型は剛体球としているので、サンプリングされた Ar の c_A は相対速度の大きさ $g (= |c_s - c_A|)$ に比例する確率で採用される。これには棄却法を用いる。 g の最大値 $g_{\max}$ が必要になるが、ここでは式 (8) を用い $g_{\max} = \bar{c}_s$ とした。ターゲット近傍では、 $g/g_{\max} \cong 1$ であるのでほとんどの c_A が採用されることになる。

c. スパッタ原子の衝突後の速度 衝突相手の速度 c_A が決まったら、これを用いてスパッタ原子の速度 c_s を衝突後の速度 c'_s に置き換える。原子模型は剛体球であるので、スパッタ原子の衝突後の速度は、

$$c'_s = \frac{1}{m_s + m_A} (m_s c_s + m_A c_A - m_A g R)$$

ただし R はランダムな方向を持つ単位ベクトルで、直角座標成分を R_x, R_y, R_z とすると

$$R_x = \sin \theta \cos \phi, \quad R_y = \sin \theta \sin \phi, \quad R_z = \cos \theta$$

ここに、 $\cos \theta = 1 - 2U_1, \quad \phi = 2\pi U_2$ 。

2.4 膜成長速度 スパッタ法で作成される膜の成長速度は以下のようにして求める。基板を半径 $r_j (j = 1, 2, \dots)$ の同心円で分割する。 $r_{j-1} < r < r_j$ の領域の成長速度は $m_s/\rho_s (\rho_s$: ターゲットの密度) と

$$\dot{F}_j = \frac{\dot{N}_j}{\pi(r_j^2 - r_{j-1}^2)} \quad (9)$$

の積となる。ただし、 $\dot{N}_j$ は単位時間当たり、 $r_{j-1} < r < r_j$ に入射するスパッタ原子の数流束。 $\dot{F}_j$ はターゲットのスパッタ速度 (エロージョン速度) $\dot{F}_0$ に比例するので、式 (1) で与えられる $\dot{F}_0(r)$ の平均値

$$\langle \dot{F}_0 \rangle = \frac{1}{\pi b^2} \int_0^b \dot{F}_0(r) 2\pi r dr \quad (10)$$

で $\dot{F}_j$ を除した値 $\dot{F}_j / \langle \dot{F}_0 \rangle$ を成長速度と呼ぶことにする。

3. 計算結果と考察

計算条件は、次のように選んだ。装置の形状は市販の小型のものに等しくとり

$$h = 40\text{mm}, \quad 2a = 80\text{mm}, \quad 2b = 102\text{mm} \\ H_1 = 10\text{mm}, \quad H_2 = 110\text{mm}, \quad 2R = 200\text{mm}$$

その他のパラメータは

$$p_A = 0.1 \sim 1 \text{ Pa}, \quad T_A = 298\text{K}, \quad E_0 = 10\text{eV}$$

とする。成膜に用いられるバックグラウンドガスはArとし、チャンパー内のアルゴン圧 p_A は変化させる。Arの原子直径は、 $d_A = 3.42\text{\AA}$ とした⁽⁶⁾。前述のように、ターゲットはアルミニウムで、原子直径 d_s は d_A に等しいと仮定する。 Δt は、 $p_A = 1 \text{ Pa}$ で 0.00233τ である。ただし $\tau = a/\sqrt{2R_A T_A}$ 。

エロージョン分布のパラメータとして、エロージョン速度が最大になる位置 $r_{\max} [=bm/(m+n)]$ と最大エロージョン深さ $e_{\max}$ を考える。また、基板での付着確率はすべて1とする。 $m+n=10$ とし、次の4通りのエロージョン分布を考える。

$$\begin{aligned} m=5; \quad r_{\max}/b &= 0.5 \\ m=6; \quad r_{\max}/b &= 0.6 \\ m=7; \quad r_{\max}/b &= 0.7 \\ m=8; \quad r_{\max}/b &= 0.8 \end{aligned}$$

エロージョン深さ $e_{\max}$ については、 $e_{\max} = 0.5, 10\text{mm}$ の3通りを考える。

最初に、 $e_{\max}=10\text{mm}$ に固定し、 $r_{\max}$ の影響について述べる。図3(a),(b)は $p_A=0.1 \text{ Pa}$ での成長速度 $\dot{F}/(\dot{F}_0)$ と膜厚分布 $\dot{F}(r)/\dot{F}(0)$ を示す。図中の r は基板中心から測った半径を示す。 $r_{\max}$ が外側に移動すると成長速度は下がるが、膜厚分布はより一様になる。図4に示すエロージョン分布が一様有的时候には、 $p_A=0.1 \text{ Pa}$ では基板周辺部で成長速度が下がっている。しかし $r_{\max}/b=0.7, 0.8$ の場合では、ターゲットの端側で発射される原子が多いために、膜厚分布の一様性は改善される。しかし $r_{\max}$ を大きくし過ぎると、中央がくぼむ傾向が現れる。つまり、最適な $r_{\max}$ が存在する。

圧力を $p_A=1 \text{ Pa}$ と高くした場合を図5(a),(b)に示す。 $p_A=0.1 \text{ Pa}$ のときに比べ、成長速度はかなり低下している。この圧力依存性は、図4に示すエロージョン分布が一様有的时候と同じである。 p_A が大のとき、スパッタされた原子が原子間衝突によって逆拡散したり、基板の外に逃げるためである。膜厚分布は $r_{\max}/b=0.8$ のとき中央がくぼむ傾向が強くなる。 $p_A=1 \text{ Pa}$ の場合で

図 3(a) 成長速度 (0.1 Pa)

図 3(b) 膜厚分布 (0.1 Pa)

 図 4 成長速度
(一様エロージョン分布)

図 5(a) 成長速度 (1 Pa)

図 5(b) 膜厚分布 (1 Pa)

も膜厚分布が最も一様になるエロージョン分布があり $r_{max}/b=0.7$ の場合である。

図 6 は、0.1 Pa での密度場である。数密度 n_s は最大値で規格化してある。基板表面に沿った密度変化に注意すると、ターゲットの外側に r_{max} が移動するにつれ、等密度線は基板に平行になるが、 $r_{max}/b=0.8$ では基板中央での密度の低下がみられる。これは、図 3(b) で $r_{max}/b=0.8$ のとき膜厚分布が基板中央でくぼむ理由である。図 7 は、1 Pa での密度場を示している。ターゲットと基板の間に密度の高い領域が形成されている。 $r_{max}/b=0.5$ から 0.7 に増加すると、最初一つであった高密度領域が分裂してドーナツ状になる (図はドーナツの断面を示す)。基板真上の等密度線から、半径 r が増すと、 $r_{max}/b=0.5$ では数密度 n_s は減少し、 $r_{max}/b=0.7$ では n_s はほぼ一定、 $r_{max}/b=0.8$ では n_s は若干増加して

$r_{max}/b = 0.5$ $r_{max}/b = 0.7$ $r_{max}/b = 0.8$

図 6 密度場 (0.1 Pa)

 $(p_A = 0.1 \text{ Pa}, e_{max} = 10 \text{ mm}, h = 40 \text{ mm})$ $r_{max}/b = 0.5$ $r_{max}/b = 0.7$ $r_{max}/b = 0.8$

図 7 密度場 (1 Pa)

 $(p_A = 1 \text{ Pa}, e_{max} = 10 \text{ mm}, h = 40 \text{ mm})$

図 8 速度場 (1 Pa)

($p_A = 1$ Pa, $e_{max} = 10$ mm, $h = 40$ mm)

いる。この挙動は図 5(b) に対応している。図 8 はスパッタ原子の流速を示す。 $r_{max}/b=0.5$ では、流速ベクトル $\mathbf{V}$ は基板端で斜めに入射しているが $r_{max}/b=0.8$ ではどの半径でも垂直に入射している。基板に入射するスパッタ原子の数流束は $-n_s \mathbf{V} \cdot \mathbf{n}$ ($\mathbf{n}$ は基板から立てた単位法線ベクトル) なので、以上のことから図 5 で示した $r_{max}/b=0.5$ に対する成長速度と膜厚分布が、基板端で小さくなる理由が分かる。

次にエロージョン深さ e_{max} の影響について述べる。 r_{max} の位置は、前述の結果より、もっとも膜厚分布の一様性が良くなるように選定した。すなわち $p_A=0.1$ Pa で $r_{max}/b=0.8$ 、 $p_A=1$ Pa で $r_{max}/b=0.7$ である。

$p_A=0.1$ Pa のとき、図 9(a),(b) から、エロージョン深さ e_{max} が大きくなると、成長速度 (図 9(a)) は全般的に下がり、膜厚 (図 9(b)) は基板端部で薄くなることが分

図 9(a) 成長速度 (0.1 Pa)

図 9(b) 膜厚分布 (0.1 Pa)

かる。これは、 e_{max} が増加すると、エロージョンされてきたターゲットのくぼみから発射された原子がすぐターゲットに再入射し付着すること、発射方向が、はじめから基板のない方向に向く場合が多くなることによる。

圧力が高い 1 Pa の場合を図 10(a),(b) に示す。0.1 Pa のときと同様に、 e_{max} が増加すると成長速度が減少することが分かる。0.1 Pa の場合との違いは、膜厚分布が e_{max} にあまり依存しなくなることである。 $e_{max}=10$ mm でもモンテカルロデータのゆらぎを考慮すれば、膜厚分布はほかの場合と変わらないといえる。これは、ターゲットと基板の間で多くの原子間衝突があるので、エロージョン深さが変化してもその影響は数回の衝突で消え去り、膜厚分布に影響を与えないからである。1 Pa の場合の膜厚分布は 0.1 Pa のときより平坦であり、

図 10(a) 成長速度 (1 Pa)

図 10(b) 膜厚分布 (1 Pa)

これより圧力が高いほうが膜厚の一様性はよいと言える。

図 11 の密度場から、どの e_{max} でもドーナツ状の密度の高い部分が形成されていることが分かる。このドーナツは e_{max} が増加するとターゲットに近づく。また同じ値の等密度線を比較すると、 e_{max} の増加にともない等密度線がターゲットに近づく。よって e_{max} が増加すると成長速度は、電極間距離が増加したような効果を受け、図 10(a) に示すように低下する。どの e_{max} でも基板上で n_s はほとんど一定である。

4. 結 論

二極平板型スパッタ装置内での原子運動をモンテカルロ法を用いてシミュレートし、ターゲットのエロージ

図 11 密度場 (1 Pa)

($p_A = 1$ Pa, $h = 40$ mm, $r_{max}/b = 0.7$)

ョン分布が成膜に及ぼす影響を調べ、以下の結論を得た。

- (1) 最大エロージョン速度の位置が外側に移動すると、成長速度は下がる。
- (2) 膜厚分布の一様性が最良になるエロージョン速度の分布が存在する。この分布はチャンバー内圧力の高低によって変わる。
- (3) エロージョン速度が一樣の場合と異なり、非一樣の場合にはある半径で膜厚が最大値を持つようにできる。
- (4) エロージョン速度の分布が一定なら、エロージョン深さが膜厚分布に及ぼす影響は小さい。

文 献

- (1) 金原, スパッタリング現象, (1984), 2, 東京大学出版会。
- (2) 南部・渡部・五十嵐, 機論, 56-524, B (1990), 887。
- (3) Bird, G.A., Molecular Gas Dynamics, (1976), 118, Clarendon.
- (4) Nanbu, K., J. Phys. Soc. Jpn. 49-5 (1980), 2042.
- (5) Bird, G.A., Molecular Gas Dynamics, (1976), 158, Clarendon.
- (6) Kay, G.W.C. and Laby, T.H., Tables of Physical and Chemical Constants, 14th Edition, (1973), 40, Longman.