

超高真空実験用スパッタ蒸着源の開発

徳高 平蔵*・百武 秀昭**・西守・克己*・高島 克己**

(1981年5月30日受理)

Sputtering Deposition Source for an Ultra High Vacuum (UHV) Experiment.

Heizo TOKUTAKA*, Hideaki HYAKUTAKE**, Katsumi NISHIMORI*
and Katsumi TAKASHIMA*

(Received May 30, 1981)

Abstract

Sputter evaporation source has been developed to observe the initial growth of thin film on the substrate in an ultra high vacuum (UHV) atmosphere. The source is necessary to control easily a low sputtering speed and work at a low voltage for the experiments. The triode source was manufactured and tested in an ordinary high vacuum. The operation was successful to make sputter deposition of Cu, Mo, W and Mo-Si.

The sputter yields which were additionally obtained from the experiments agreed very well with the values in the already published reference.

1. ま え が き

スパッタ蒸着法は、半導体、Mo、Taなどと合金を作る金属 (Fe, Ni) など、又、高融点物質 (Mo, W) などの薄膜化が可能であり、高純度の薄膜を作り得る。

又、膜厚の制御が比較的容易に行なえる等の特徴を有しているため、薄膜作成には、有用な技術である。これは、薄膜成長過程の研究において、注目される技術でもある。そこで、オージェ電子分光法 (Auger Electron Spectroscopy ; AES)、低速電子線回折 (Low Energy Electron Diffraction ; LEED) などを使用して、固体表面領域の分析、そして特に金属薄膜の成長過程、およびシリサイドの形成過程の研究を行うために超高真空装置用のスパッタ源の製作を行い、そのスパッタ源を用いて、金属並びに半導体の薄膜生成実験を行った。

1. 1 スパッタリングの薄膜形成過程

電界により加速されたイオンが、固体表面に衝突すると、二次電子放出、X線放射、イオンうめ込み等の現象が起る。衝突イオンは、電界放出された電子により中和されるが、運動量はそのまま保存し固体内に突入する。突入した中性イオンは、固体を構成する原子や分子と衝突し徐々にエネルギーを失い停止する。固体内では、中性イオンの突入により結晶格子を構成する原子が相互に衝突を繰り返し、ついには表面の原子や分子が、外部に放出される。このように、原子サイズの粒子が、固体表面から、固体を構成している粒子を、たたき出すことを、スパッタリングという。Fig. 1に、これらの諸現象を示す。^{1),2)}

スパッタリングによる薄膜形成の過程は、①陰極面で

* 電子工学科 Department of Electronics

** 現在、日鉄電設工業KK Nittetsu Densetsu Engineering Co. Ltd.

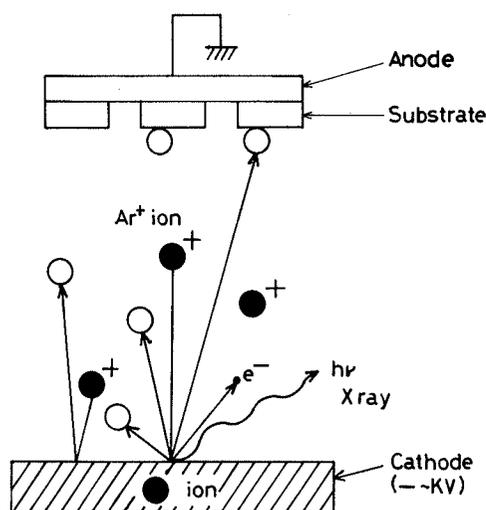


Fig. 1 Phenomena by an ion bombardment.

のスパッタリング, ②陰極からたたき出された中性原子(スパッタ原子)のプラズマ空間中の飛行, ③基板面へのスパッタ原子の到達と薄膜形成の3段階に大別される。

第1段階は, 上述のように, イオン衝撃による固体表面の一現象である。スパッタされる原子の相対的な数は, 陰極物質の種類に依存し, 衝突イオンのエネルギーにより変化する。第2段階では, スパッタ原子は, プラズマ中を, ガス分子やイオンと衝突しながら通り抜け, 基板面に到達する。スパッタ原子の運動エネルギースペクトルは, 数 eV に強いピークを持っており, 入射イオンエネルギー付近まで長く尾を引いているが, 平均エネルギーは, 10 eV 前後である。スパッタ原子の放出は, 余弦則に従うと言われるが, スパッタリング中のプラズマガスの圧力により, 基板表面への到達過程は違うであろう。圧力 10^{-2} Torr のアルゴン中での平均自由行程 (mean free path; m. f. p.) で約 0.5 cm であるから, スパッタ原子は, 陰極 (ターゲット) から基板まで (約 4 cm) 飛行する間に, 中性分子やイオンとの衝突を繰り返し, 初期エネルギーを失わない, 一部は, 後方散乱され, 拡散に近い形で飛行すると考えられる。又, 圧力 10^{-4} Torr のアルゴン中での m. f. p. は, 室温で数 10 cm であるから, スパッタ原子は余弦則に従う分子流として飛行すると考えられる。

第3段階は, 基板表面における薄膜形成の問題で, アルゴンの中性分子およびイオンの衝突, スパッター原子のエネルギー, 基板温度とガス吸着, 等に左右されるが, 附着強度の大きい微細結晶構造をとる傾向がある。

1. 2 スパッタ蒸着法の種類

以上に述べたスパッタ現象を利用したスパッタ蒸着には, 多数の方法が考案され実用化されている。ここでは, 代表的なスパッタ方法について, その概略を記す。

(1) 二極スパッタ¹⁾

これは, Fig. 1 に示すようにスパッターされるターゲット (陰極) と膜をつける基板およびそのホルダー (陽極) とからなる最も簡単な方法である。

(2) 高周波 (RF) スパッタ¹⁾

これは, 二極スパッタ装置の陰極に高周波電力を導入するために, 構造に工夫がなされている。この方式の特徴は金属でも誘電体でもスパッタできること, 高周波放電のため, 低電圧でも高密度のプラズマが発生するので, 膜の生成速度が大きいことである。

(3) 三極又は四極スパッタ^{4),5)}

Fig. 2 に装置の概略を示す。熱陰極と低電圧陽極の間に, 熱電子放射により支えられたプラズマを作り, このプラズマに対して, ターゲットを負電位に保ち, プラズマの中のイオンで, ターゲットを衝撃してスパッタリングを行う。安定化電極のあるのが, 四極スパッタと呼ばれ, 放電の安定化がなされている。この方式の長所は, ① 10^{-3} ~ 10^{-4} Torr 台の低圧中で, スパッタリングできる

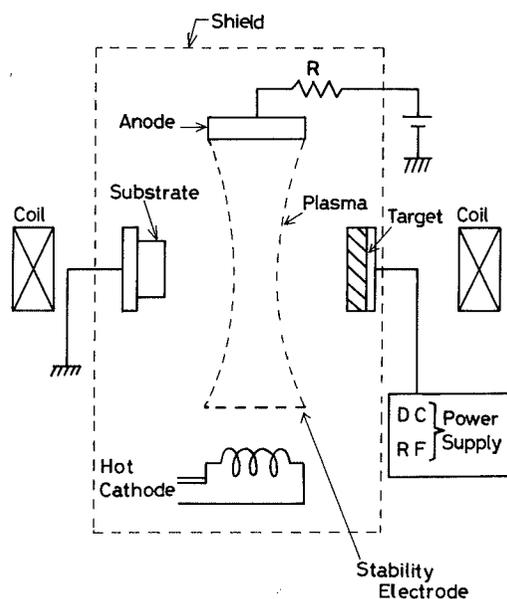


Fig. 2 A scheme of Tetrode sputtering apparatus.

こと、②放電（プラズマ）電流とターゲット電流を独立に制御できること、③100°C以下の低温度で膜が生成できること、等がある。一方、酸素を用いる反応性スパッタリングに適さないこと、広いターゲット面積に対して均一なプラズマを作ることが難しいことなどの欠点がある。

(4) マグネトロンスパッタ⁹⁾

前述したスパッタ方式では、スパッタ蒸着速度を上げることが、非常に困難である。(仮に、投入電力を増大しても、膜への悪影響がある。)この問題を解決したのが、マグネトロンスパッタである。電界と磁界の相互作用によって電子がスパイラル運動をし、電子によるガス分子のイオン化確率が増し、閉じ込められたプラズマの密度が増大する。このためターゲット電圧が-500 V前後で放電プラズマ電流密度が従来の方式より一桁は上げることが出来る。UHV装置中でのスパッタ蒸着薄膜の初期成長の観察には、この方法は、しかしスパッタスピードが大きすぎるのが現時点では都合がわるいこと、また磁石を使用するため、電子分光分析に支障をきたすため、現時点ではとり扱かなわいことにする。

2. 三極スパッタ蒸着法

2.1 従来の三極スパッタ蒸着法

第1章で、スパッタ蒸着法の一般的な特徴を述べたが、UHV用のスパッタ源を考えた場合に、低圧力(10⁻³~10⁻⁴Torr)下でのスパッタリングが可能で、プラズマの制御が比較的容易な三極スパッタ方式が適している。

まず始めに、Fig. 2を基にして三極スパッタ装置を製作した。スパッタ源は、ターゲット、陽極(プレート)、フィラメント、水晶振動子(基板)からなっており、スパッタされた原子が、真空容器(ベルジャー)内に飛散しないように、ステンレスボックス(Fig. 2中の点線)に納められている。放電の発生においては、フィラメント-プレート間の距離が問題となるが、圧力10⁻⁴Torr台で、安定なプラズマを作るためにその距離は4 cmとなっている。プラズマ電流は、数kオームの安定化抵抗(Fig. 2中の抵抗R)により、安定はしているが、プラズマはボックス内全体に広がっていて、ターゲットの裏面まで被っているものと思われる。

スパッタリングの動作機構については、第1章2節で述べた。スパッタリングには、安定かつ高密度のプラズマを発生させることが最も重要である。一般には、プラズマの軸方向に直交した磁界をかければ、電子は、フィラメントからプレートに向かう間にらせん運動をし、ガス分子との衝突が増し、結果として、プラズマの密度を

高めることができる。しかしながら、この装置においては、フィラメント-プレート間の距離が短いために磁界によるプラズマの高密度化は十分には達成されないだろう。又、プラズマ中のアルゴンイオンが磁界をかけることにより集束され、電場Eと磁場BとによってE×Bなる方向に力を受け、ターゲットに到達するアルゴンイオンの量が減少し、ターゲット電流が結果として減少すると考えられる。従って、UHV用のスパッタ源を製作するにあたっては、プラズマの安定化と高密度化に磁界を用いない他の方法を考える必要がある。

2.2 集束チューブを用いた三極スパッタ蒸着法^{6,7)}

前述した通り、フィラメントとプレートの間に発生するプラズマを均一かつ高密度に集束させることは、プラズマスパッタ法において、最も重要である。集束チューブを用いて、これを達成する装置の概要をFig. 3に示す。これは、低圧力、低電圧で高密度のプラズマを作り出すために考案され、LVS(Low Voltage Sputtering)システムとして実用化されている。ここでは、プラズマ発生装置の集束チューブ(管)をモデル解析して述べる⁹⁾。プラズマの軸方向の断面をFig. 4のように考える。軸方向の電界E_zを管断面に一樣と仮定すると、電子の速度v_eは、rによらず一定でv_e=μ_eE_z(μ_e:電子の移動度)で与えられる。任意の管断面について、電子電流i_eは、nを電子密度とすれば、

$$\begin{aligned} di_e &= env_e 2\pi r dr \\ &= en_0 J(x) v_e 2\pi r dr \quad \dots\dots\dots (1) \end{aligned}$$

となる。但し、n₀は軸中心での電子密度、J₀(x)はベッセル関数である。xと半径rには、r=R/2.41・xの関係があるから、di_eは、

$$di_e = 2\pi e v_e n_0 \left(\frac{R}{2.41}\right)^2 x J_0(x) \quad \dots\dots\dots (2)$$

となる。電子電流i_eは、式2中をx=0~x=2.41まで積分することによって、

$$\begin{aligned} i_e &= 2\pi e v_e n_0 \left(\frac{R}{2.41}\right)^2 \int_{x=0}^{x=2.41} x J_0(x) dx \\ &= 1.36 e v_e R^2 n_0 \quad \dots\dots\dots (3) \end{aligned}$$

となる。ここで、プラズマ中では、電子とイオンの密度が等しいから、プラズマ電流(管電流)iは、

$$i = i_e \left(1 + \frac{\mu^+}{\mu_e}\right) \cong i_e \quad \dots\dots\dots (4)$$

となり、軸中心での電子密度は、式3のi_eをiに入れ替

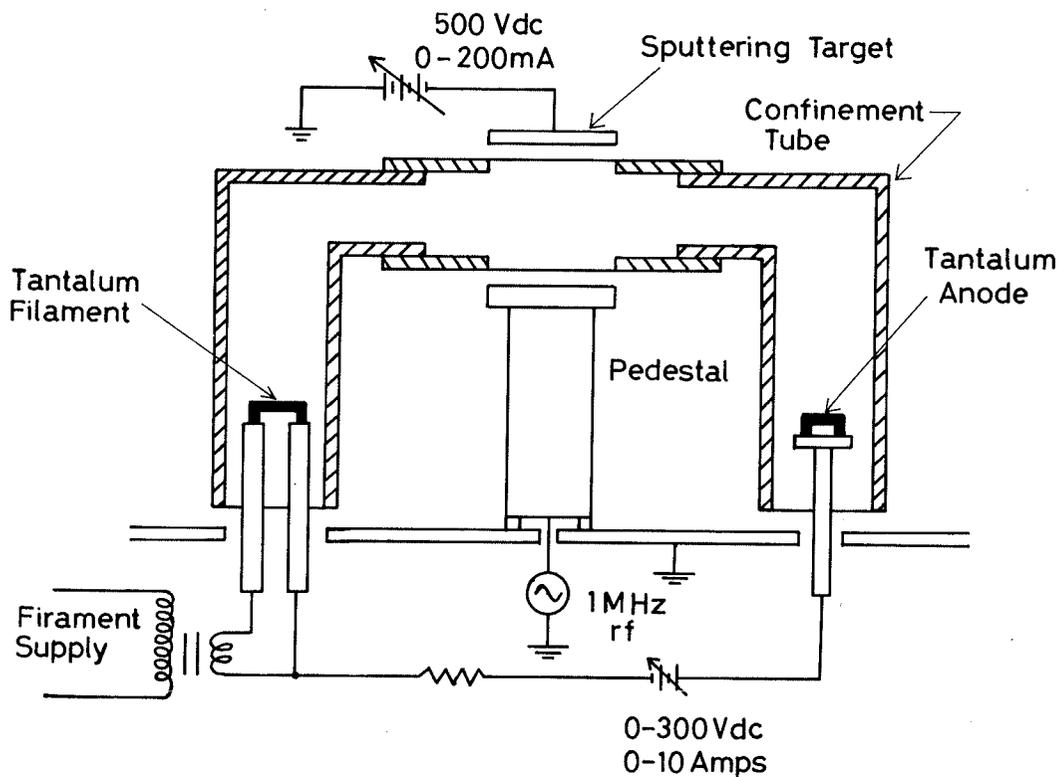


Fig. 3 A scheme of a Low Voltage Sputtering system^(6),7).

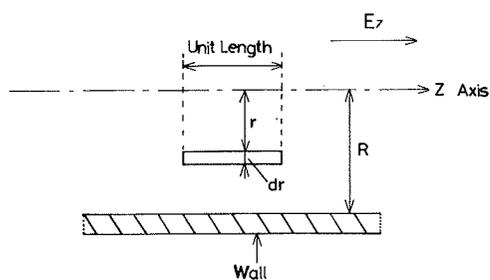


Fig. 4 Cross-section of cylindrical focussing tube.

えて、

$$n_0 = \frac{i}{1.36 e v_e R} \dots\dots\dots (5)$$

となる。ついで、管壁面における電子密度 n_R を求める。一般に、単位長当りの面をたたく電子数は、 \bar{C}_e を電子の平均熱運動速度として、 $\frac{1}{4} n_R \bar{C}_e 2 \pi R$ で表わされる。こ

れだけの電子が壁面での再結合で毎秒失なわれる。一方、電子の毎秒の発生数は、単位長当り、電離頻度を ν とすると $\nu_i \frac{i}{e v_e}$ であるから、壁面での電子密度 n_R は、

$$n_R = \frac{2 \nu_i i}{\pi e v_e i_e R} \dots\dots\dots (6)$$

となる。式5、6より、壁面と軸中心での電子密度の比率は、

$$\frac{n_R}{n_0} = \frac{2.72}{\pi} \frac{\nu_i R}{\bar{C}_e} \dots\dots\dots (7)$$

となり、管の半径 R に比例する。一般のアルゴン放電プラズマでは、 $n_0 \gg n_R$ となる。それゆえ、集束チューブを用いたプラズマ装置では、高密度のプラズマを作ることができる。管壁面の電位 V_w は、電子、イオンの電流密度を J_e 及び J^+ とすると、 $J^+ = J_e$ の条件から次のようになる。

$$V_w = \frac{K T_e}{e} \ln \frac{J^+}{J_e} \dots\dots\dots (8)$$

但し、 k はボルツマン常数、 T_e は電子温度である。これ

は、 $J_e > J^+$ のとき、負である。このために、集束チューブは電氣的に絶縁され、プラズマと関係した電位を持つようにしてある。以上のことより、集束チューブを用いた三極スパッタ装置は、高密度のプラズマを作り得るものと考えられる。

3. スパッタ源及び実験方法

3. 1 スパッタ源の構造

集束チューブを用いた三極スパッタ蒸着法の理論と Fig. 2 を基にして製作したスパッタ源を参考にして、UHV 用のスパッタ源を製作した。その概要を、Fig. 5 に示した。

このスパッタ源は、ターゲット、陽極(プレート)、フィラメント、集束チューブ及び基板としての水晶振動子とからなっている。

集束チューブは、電氣的に絶縁されており、プラズマを閉じ込めるようになっている。スパッタされた原子が、真空容器(バルジャー)内に飛散しないためのボックスとしても役立っている。ターゲットは、厚さ 0.1 mm ~ 1.0 mm のもので、集束チューブとは、セラミックで絶縁されており、ターゲットと対向して置かれている水晶振動子の中心軸上にくるように製作した。フィラメントは、 ϕ 0.15 mm のタングステン線を 1 回巻きにして用いた。水晶振動子に対する熱放射及びターゲットからフィラメントへ飛び込むスパッタされた原子の影響を少なくするために、集束チューブとは別のステンレスボックスに納め、

水晶振動子、ターゲットから見えない位置に取り付けた。プレートは、ステンレス製でターゲットと同様に集束チューブとは、セラミックで絶縁されている。

放電の発生は、フィラメント-プレート間の距離に非常に影響される。今回製作したスパッタ源では、圧力 10^{-4} Torr 台で安定な放電を得るために、この距離を 4.2 cm とした。又、スパッタ蒸着速度及び膜厚の均一性を高めるためには、膜生成に有効なスパッタされた原子の数を増せば良い。すなわち、水晶振動子-ターゲット間の距離は短いほど良い。しかしながら、その距離が短かすぎるとターゲットの負電位によってできるイオン鞘によって、プラズマが破壊される恐れがある。今回製作したスパッタ源では、ターゲット-水晶振動子間の距離は、3.7 cm とした。

3. 2 実験方法

スパッタ蒸着実験は、ウェット系の高真空装置を用いて行った。ここでは、実験手順とスパッタ源の放電特性について述べる。

3. 2. 1 実験手順

実験には、予備実験として高真空装置(油回転ポンプ+油抽散ポンプ+窒素トラップのいわゆるウェット系と呼ばれるもの)を使用した。到達圧力は $\sim 10^{-6}$ Torr 程度である。

スパッタ源の各部分を 10% 硝酸溶液で超音波洗浄した後に、アセトンで洗浄し、高真空装置にセッティングする。

後述する Mo-Si の実験では、Si を標準エッチング液で 5 分間の表面エッチングの後に、ターゲットに取り付けた。

排気後、 $2.0 \sim 4.5 \times 10^{-6}$ Torr の圧力まで排気して、5 分間程度、タングステンフィラメントのガス出しを行う(フィラメント電流 3.5 A)。次にアルゴンガスを徐々に導入し、 $8 \sim 9 \times 10^{-4}$ Torr 程度のアルゴン雰囲気を作る。この圧力下で、フィラメント電流 3.5 A、プレート電圧 300 V を印加すれば、放電が生じプラズマ状態ができる。このとき、プラズマ電流を測定する。プラズマ電流の変化は、主に Fig. 5 のプレートと電源の間の安定化抵抗 R (数 k Ω) の値を変えることで、行った。

プラズマ状態の中で、ターゲットに負の電圧(-500 ~ -1200 V) を印加すれば、スパッタリングが行われる。ターゲットの表面には、酸化物や付着物の被膜ができていますので、ターゲット電圧印加後、漸く、スパッタ洗浄をしてから、スパッタ蒸着実験を行う方が、好結果を生むと

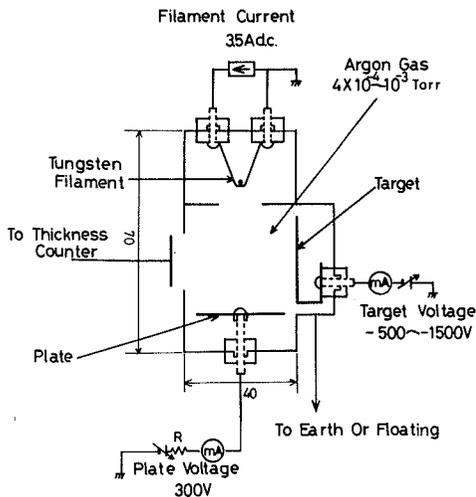


Fig. 5 A scheme of a Triode sputtering experimental apparatus.

思われる。又、水晶振動子は、水冷をしておく必要がある。

3. 2. 2 スパッタ源の放電特性

スパッタ蒸着法において、再現性のある膜を得るには、一定条件で放電を安定に持続させることが最も重要である。放電特性に影響を及ぼす因子としては、圧力、フィラメント電流、磁界の有無等が考えられる。Fig. 6に、

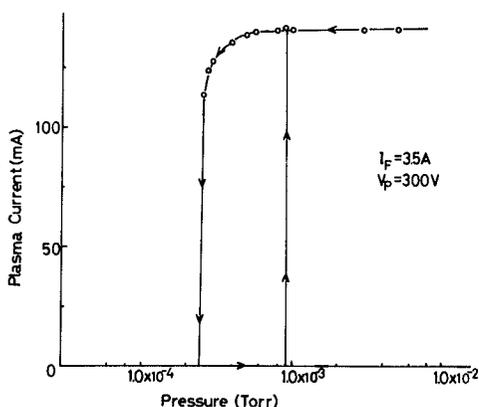


Fig. 6 Characteristics of plasma discharge as a function of Ar pressure.

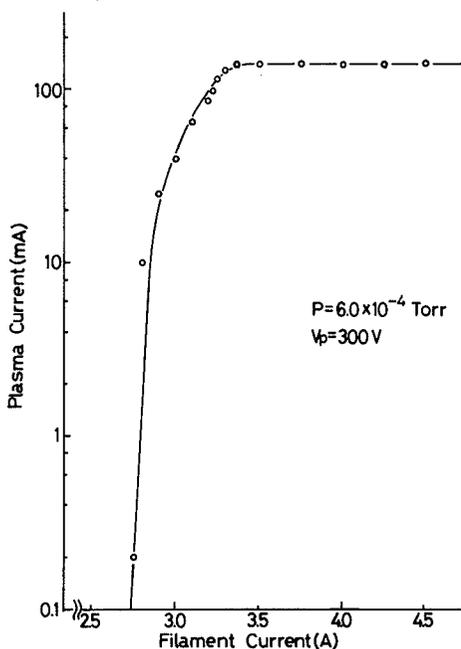


Fig. 7 Characteristics of plasma discharge as a function of filament current.

プレート電圧及びフィラメント電流を一定に保ち、アルゴン雰囲気内の圧力変化に対するプラズマ電流の変化を示した。放電は、 9×10^{-4} Torrで起動し、プラズマ電流は、 4×10^{-4} Torr付近まで一定しているが、それ以下の圧力では、急速に減少する。 2.6×10^{-4} Torr近くで消滅した放電は、再度圧力を 9×10^{-4} Torrまで高めないと再起動しない。

次に、プレート電圧及び圧力を一定に保ち、フィラメント電流を変化させた時のプラズマ電流の変化をFig. 7に示した。フィラメント電流が、3.2 A以上では、プラズマ電流は一定しているが、3.2 A以下になると、フィラメント電流の小変化に対して、プラズマ電流は急激に大きく変化する。以上のことより、放電は、アルゴン雰囲気内の圧力 6.0×10^{-4} Torr、フィラメント電流3.5 A付近で非常に安定であることが解った。

3. 3 膜厚測定法

膜厚の変化を測定する方法の一つに水晶振動子法がある。スパッタ蒸着実験では、この方法を用いて膜厚の測定を行った。

この方法の原理は、水晶振動子の固有振動が、その質量の変化により、変化することを利用したものである。すなわち、水晶振動子に薄膜が付着されると水晶振動の質量に比べその薄膜の質量が十分に小さければ、単に水晶振動子の質量あるいは厚さが増加したのと同じ効果が生じ、質量変化に比例した固有振動数の変化を生ずることを利用したものである。

結論として、膜厚変化 dt_0 と周波数変化 df は次の式で表わされている。

$$dt_0 = -\frac{\rho_c}{\rho_0} \frac{N}{f^2} df \dots\dots\dots (9)$$

となる。ここで、 ρ_c は水晶振動子の密度、 ρ_0 は付着膜の密度、 N は周波数定数、 f は水晶振動子の基本周波数である。これは、膜厚が増加すると、周波数が比例減少することを示している。使用した水晶振動子の各定数は、

$$f = 6.0 \text{ MHz} = 6.0 \times 10^6 \text{ Hz}$$

$$N = 1670 \text{ kHz} = 1.670 \times 10^6 \text{ Hz}$$

$\rho_c = 2.65 \text{ g/cm}^3$ であるから、式9に代入すると、

$$dt_0 = -1.23 \frac{df}{\rho_0} [\text{\AA}] \dots\dots\dots (10)$$

となる。これより、銅 ($\rho_0 = 8.93 \text{ g/cm}^3$)、モリブデン ($\rho_0 = 10.20 \text{ g/cm}^3$)、タングステン ($\rho_0 = 19.30 \text{ g/cm}^3$)、その他

銅のスパッタ蒸着実験の結果を示した。

Fig. 8の結果は、周波数-膜厚変換式 $dt_0 = -0.1377 df$ を用いて、実験結果を膜厚に換算したものである。これらよりスパッタ蒸着速度 ($\text{\AA}/\text{min}$) を算出し、Table IIにその一例を示す。Fig. 8, Fig. 9はターゲット電

圧を一定に保ち、プラズマ電流を変化させたときの膜厚の変化を、時間の関数として示したものである。良好な直線性がみられ、時間並びにプラズマ電流によって膜厚の制御が容易にできることがわかる。プラズマ電流、ターゲット電圧を増加させると、膜厚もこれらに順じて増加している。

これは、膜厚の増加すなわち、スパッタ蒸着速度がこれらの関数であることを意味している。ここで、ターゲット電圧を変化させる場合と、プラズマ電流を変化させた場合のスパッタ蒸着速度の変化を比較してみると、例えば、ターゲット電圧-500 V、プラズマ電流 50 mAでの、スパッタ蒸着速度 $8.68 \text{ \AA}/\text{min}$ を基準として、ターゲット電圧だけを-900 V (1.8倍) に増加した場合に、スパッタ蒸着速度は、 $15.97 \text{ \AA}/\text{min}$ (1.84倍) となり、プラズマ電流だけを、90 mA (1.8倍) に増加した場合には、スパッタ蒸着速度は、 $12.45 \text{ \AA}/\text{min}$ (1.43倍) となる。すなわち、スパッタ蒸着速度は、プラズマ電流より、タ

Table II One example of sputtering speed of Cu at 6×10^{-4} Torr Ar atmosphere.

V_T (V)	I_P (mA)	I_T (mA)	D_s ($\text{\AA}/\text{min}$)
-500	50	1.15	8.68
	90	1.80	12.45
	140	2.90	17.68
-1000	50	1.40	17.78
	90	2.20	26.63
	140	3.40	39.66

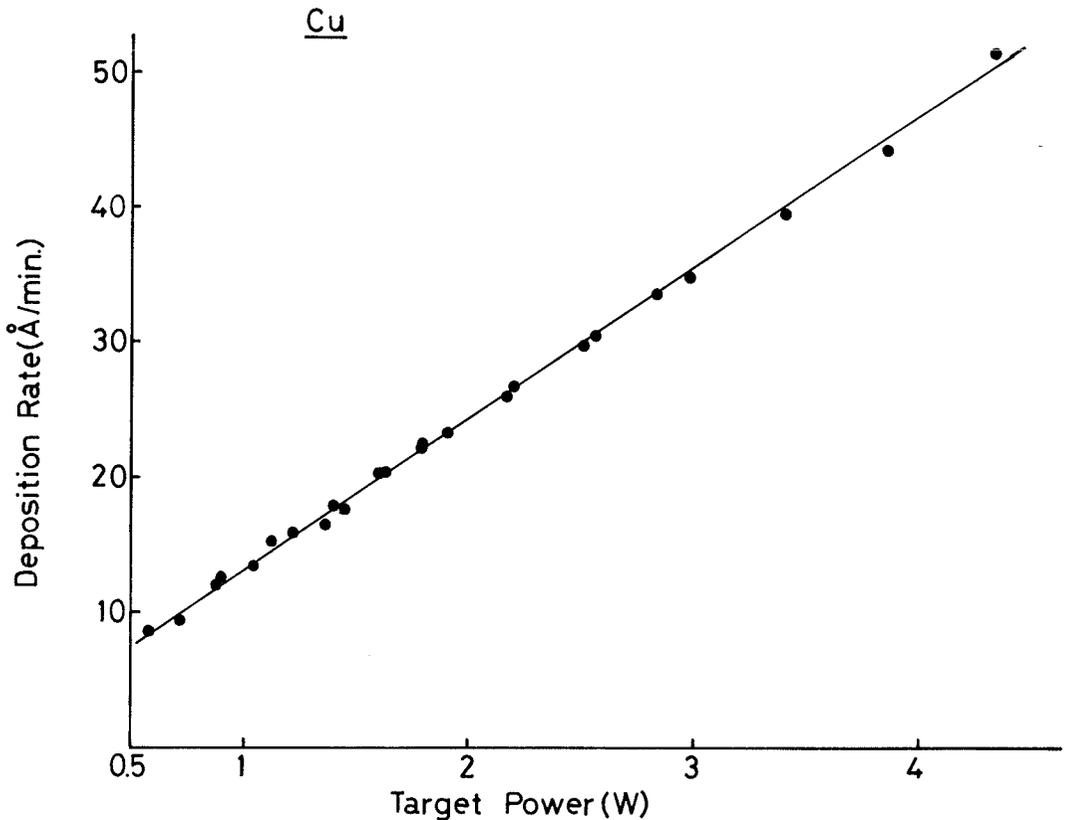


Fig. 10 Cu deposition rate vs target power.

ターゲット電圧により大きく依存していることが解る。

スパッタ蒸着速度は本来、ターゲットをスパッタリングするイオンのエネルギー量に依存する。これは、ターゲットで消費される電力が、スパッタ蒸着速度の関数であることと同義である。Fig. 10 にスパッタ蒸着速度の変化を、ターゲット電力の関数として、示した。スパッタ蒸着速度が、ターゲット電力にほぼ比例していることが解る。多少のバラツキがあるのは、プラズマ電流を変化させて、一定条件で測定できなかったためと考えられる。これより、この装置では、スパッタ蒸着速度を、ターゲット電力で制御することが可能なことが解る。

次に、集束チューブを接地した時の Cu のスパッタ蒸着実験の Fig. 11 では、上述の接地しない実験と同様なことが言える。ここで、Fig. 11 に同一条件で集束チューブを絶縁及び接地した場合の実験結果を示した。これより、スパッタ蒸着速度は、集束チューブを絶縁した場合の方が、接地した場合よりも大きいことが解る。これは、第2章で述べたように、本来、集束チューブは、負に帯電し、プラズマとの間に、イオン鞘を作り、プラズマを集束させるはずであるが、これを接地することで、イオン鞘が消滅し、プラズマが集束チューブ全体に拡がり、結果として、ターゲット電流（流れ込むイオン）を減少させるためと考えられる。

以下の実験では、集束チューブを絶縁した場合の結果である。

Fig. 12 に、モリブデンのスパッタ蒸着実験の結果を示した。これより、銅の場合と同様なことが言える。スパッタ蒸着速度は、銅よりも小さい。

Fig. 13 に、タングステンのスパッタ蒸着実験の結果を示した。タングステンのスパッタ蒸着速度は、銅、モリブデンよりも小さい。

モリブデンとシリコンの2つのターゲットを用いて、合金モリブデン-シリコンの膜生成の実験を行った。周波数-膜厚変換式を用いて、実験結果を膜厚に換算するにあたり、生成膜の密度 ρ_D はターゲット電流密度が一樣、スパッタされた原子数の比率で蒸着するものとして、モリブデン及びシリコンの密度、ターゲット面積、スパッタ率を、各々、 ρ_{Mo} 、 ρ_{Si} 、 A_{Mo} 、 A_{Si} 、 S_{Mo} 、 S_{Si} とすれば、スパッタされる原子の数は、ターゲット面積とスパッタ率に比例するので、

$$\rho_D = \rho_{Si} \frac{1}{1 + A_{Mo} S_{Mo}} + \rho_{Mo} \frac{1}{1 + A_{Si} S_{Si}} \dots (11)$$

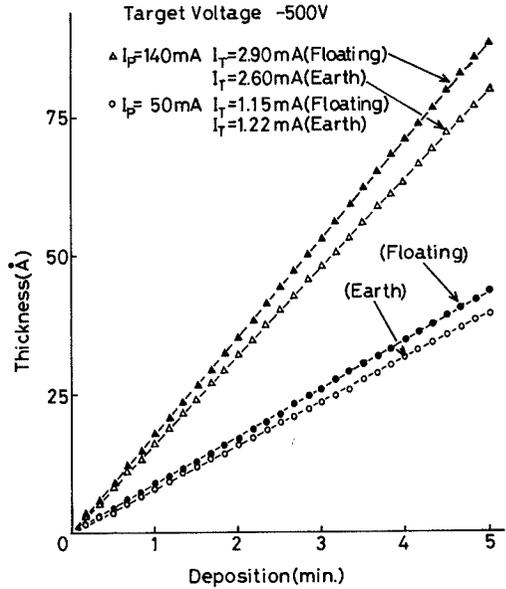


Fig. 11 The difference of the Cu deposition characteristics, whether the focussing tube is earthed or not.

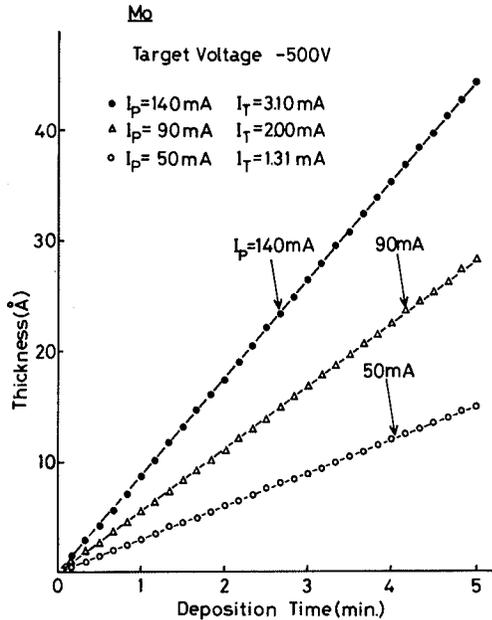


Fig. 12 Mo sputter deposition characteristics as a function of plasma current.

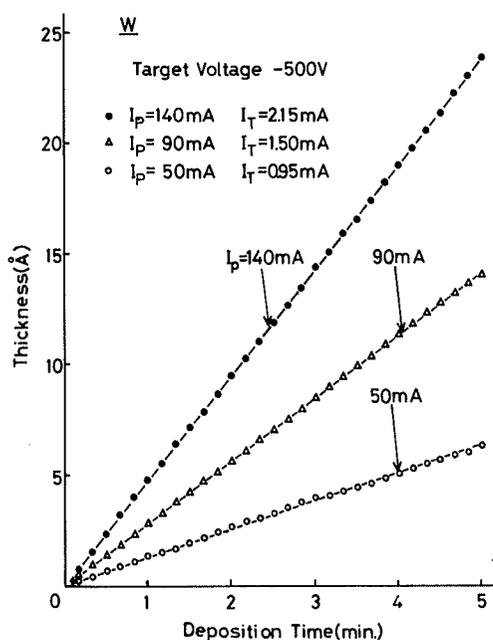


Fig. 13 W sputter deposition characteristics as a function of plasma current.

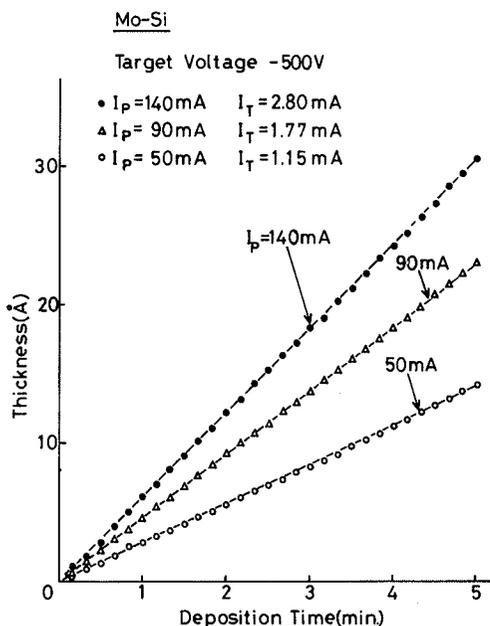


Fig. 14 Mo-Si sputter deposition characteristics as a function of plasma current.

と表わせるとした。Fig. 14 に、膜厚換算した結果を示した。金属ターゲットの場合と同様なことが言える。

以上のことより、このスパッタ装置では、スパッタリングは、アルゴン雰囲気圧力 6.0×10^{-4} Torr 付近で安定に起こる。又、膜厚を時間またはプラズマ電流で、スパッタ蒸着速度を、ターゲット電力で、制御することが可能で再現性も良い。

4. Cu, Mo, W のスパッタ率の計算とその比較

Fig. 15 に、同一条件(ターゲット電圧-500V, プラズマ電流 90mA, アルゴン雰囲気圧力 6.0×10^{-4} Torr) 下での、銅、モリブデン及び、タングステンのスパッタ蒸着実験の結果を示した。図中の傾きは、スパッタ蒸着速度を表わしている。その値は、銅>モリブデン>タングステンとなっており、その比率は、2.45 : 1 : 0.7 となっている。スパッタ蒸着速度は、スパッタ率(1個のイオンの入射によってスパッタされる原子の数、物質に依存する)に比例する。ここでは、スパッタ率を求める式を導出する。

・水素振動子に式を付着した膜の面積 S_1 (cm²)

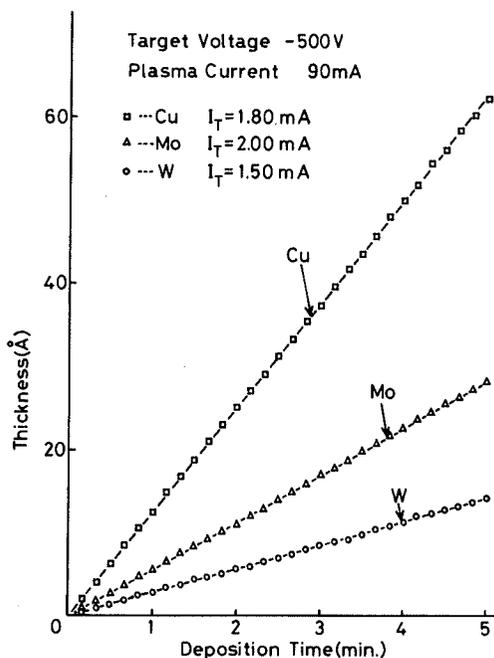


Fig. 15 The comparison of the sputtering deposition characteristics among Cu, Mo and W at the same sputter condition.

- ・付着膜厚 T (cm)
- ・スパッタ蒸着時間 t (sec)
- ・付着物の密度 ρ (g/cm³)
- ・付着物の原子量 M
- ・ターゲットの面積 S_2 (cm²)
- ・ターゲット電流 I_T (A)
- ・アボガドロ数 $N = 6.02 \times 10^{23}$ (個/ion)
- ・イオンの電荷 $q = 1.60 \times 10^{-19}$ (C)
- ・スパッタリング幾何による係数 A

とすると、水晶振動子に付着した膜の体積は、 $S_1 T$ (cm³) となるので付着物の重量は、 $S_1 T \rho$ (g) であり、単位面積当り、 $T \rho$ (g/cm²) となる。単位面積当りの付着物の原子数は、 $T \rho N / M$ (個/cm²) となっている。1秒間に単位面積当り付着される原子数は、 $T \rho N / M t$ (個/cm², sec) となる。一方、単位面積当り、1秒間に、ターゲットに流れ込むイオン数は、 $I_T / S_2 q$ (ion/cm², sec) である。スパッタ幾何による係数 A は、スパッタされた原子の水晶振動子への到達割合であるから、これを含めて、スパッタ率を求める式は、

$$S = \frac{1}{A} \frac{T \cdot \rho \cdot N}{M \cdot t} \bigg/ \frac{I_T}{S_2 \cdot q}$$

$$= 9.65 \times 10^4 \frac{1}{A} \frac{T \cdot \rho \cdot S_2}{M \cdot t \cdot I_T} \text{ [個/ion]} \quad \dots\dots (12)$$

となる。係数 A を求めるに当り、ターゲット面における電流密度が一樣、スパッタされる原子の角度分布が余弦則に従う、ターゲット-水晶振動子間で原子は無衝突、付着確率が1であると仮定する。Fig. 16 に示すように、ターゲット面から、法線方向に放出される原子数 $I(0)$ とすると $I(0)$ が作る球面全体に放出される全原子数 Φ を求めるには、球座標を考える。微小面積 $dS = R^2 \sin\theta d\theta d\phi$ に放出される原子数は、

$$d\Phi = \frac{I(\theta, \phi)}{R^2} \cdot R^2 \sin\theta d\theta d\phi$$

$$= I(\theta, \phi) \sin\theta d\theta d\phi \quad \dots\dots (13)$$

従って、全原子数は、

$$\Phi = \int d\Phi = \int_0^{2\pi} \int_0^\pi I(\theta, \phi) \sin\theta d\theta d\phi \quad \dots\dots (14)$$

放出が、軸方向対称になるから式 14 は

$$\Phi = 2\pi \int_0^\pi I(\theta) \sin\theta d\theta \quad \dots\dots (15)$$

仮定より、法線方向から、角度 θ で放出される原子数

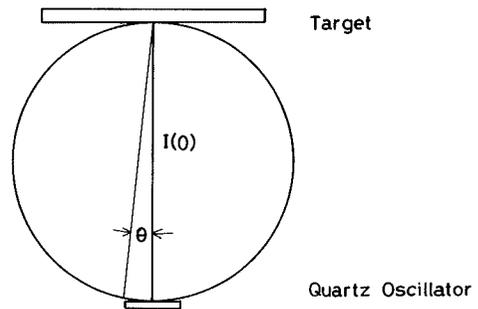


Fig. 16 The sputtered specimen is assumed to follow a cosine law distribution at the substrate (a quartz oscillator).

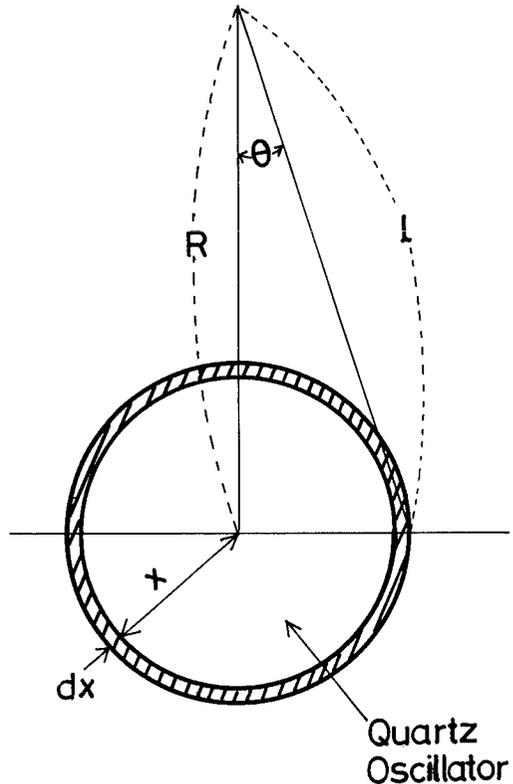


Fig. 17 A differential area on the substrate (a quartz oscillator).

は、 $I(0) \cos\theta$ で表わされるから、全放出原子数は、

$$\Phi = 2\pi \int_0^\pi I(0) \cos\theta \sin\theta d\theta$$

$$= \pi I(0) \quad \dots\dots (16)$$

次に、半径 r の水晶振動子にスパッタされて到達する原子数 Φ' は、Fig. 17 のように、中心から、 x 離れた幅 dx の微小円環の面積 $dA = 2\pi x \cdot dx$ での水平面に到達する原子は、法線方向から来るものと、法線と角度を持って来るものの和と考えられるから、ターゲットから水晶振動子までの距離を R とすると、次のようになる。

$$\Phi' = 2\pi I(0) \int_{\theta=0}^{\tan^{-1} \frac{r}{R}} (\cos\theta + 1) \cos\theta / l^2 x dx \quad \dots\dots(17)$$

ここで、 $x = l \sin\theta$ であるから、式 17 は、

$$\begin{aligned} \Phi' &= 2\pi I(0) \int_{\theta=0}^{\tan^{-1} \frac{r}{R}} (\cos\theta + 1) \sin\theta d\theta \\ &= 3\pi I(0) [1 - \cos(\tan^{-1} \frac{r}{R})] \quad \dots\dots(18) \end{aligned}$$

となる。よって、スパッタされる全原子数に対する水晶振動子に到達する原子数の割合である係数 A は、式 16、式 18 より、

$$A = \frac{\Phi'}{\Phi} = 3[1 - \cos(\tan^{-1} \frac{r}{R})] \quad \dots\dots(19)$$

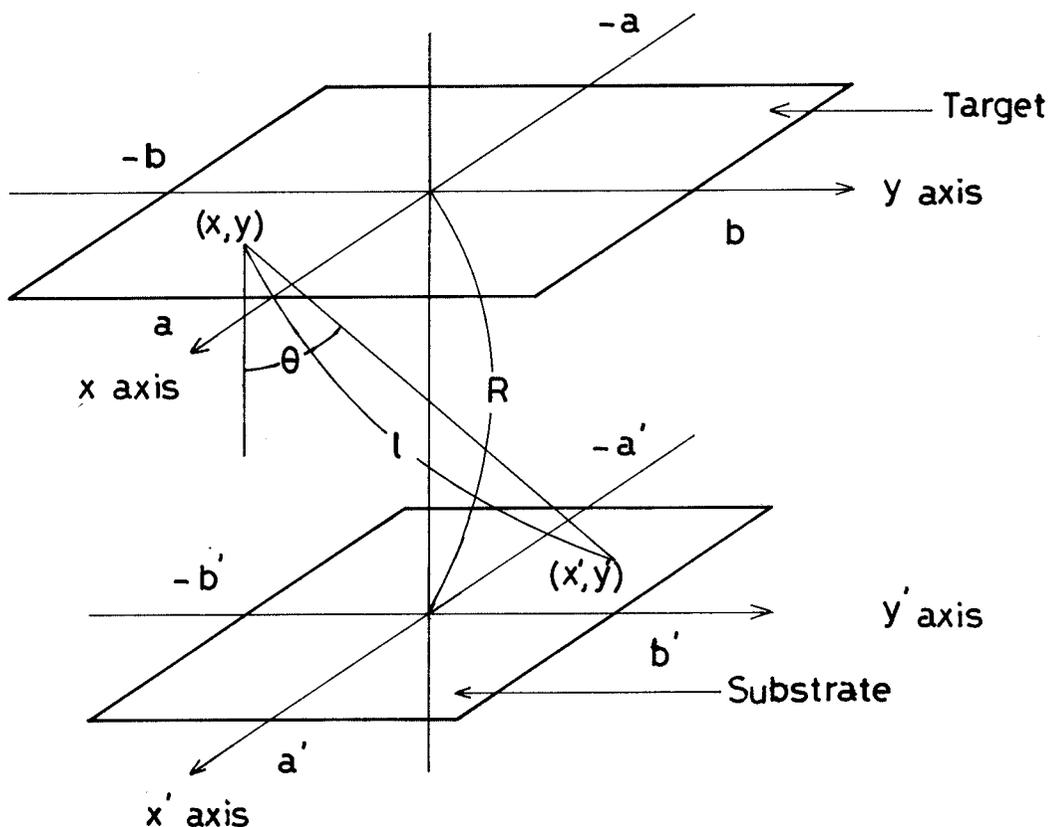
となる。 $r=0.6$ cm, $R=3.7$ cm として、式 19 より、 A は、0.0387 となる。この値を、式 12 に代入し、このスパッタ装置でのスパッタ率を求める式を導出すると、

$$S = 2.49 \times 10^6 \frac{T \cdot \rho \cdot S_2}{M \cdot t \cdot I_T} \quad \dots\dots(20)$$

この式を用いて、銅、モリブデン、タングステンのスパッタ率を求め、Table III に示す。これは、文献 (9) にある、500 eV のエネルギーを持つアルゴンイオンによるスパッタ率の 70~80% 台の値になっている。

次に、上記と同様の仮定のもとで、スパッタ幾何を正確に解析し、係数 A を求めた。(Fig. 18 参照)

ターゲットのある一点から、鉛直方向から角度 θ で放出される原子数は、 $I(0) \cos\theta$ であり、距離 l の基板の



18 The schematical model for the numerical calculation of the sputtering yields.

Table III Observed sputtering yields S of Cu, Mo and W (Sputtering condition ; $I_p=90$ mA, $V_T=-500$ V, Target area = 5 cm², Sputtering time = 300 sec, Ar pressure = 6×10^{-4} Torr).

	Atomic mass (M)	density ρ (g/cm ³)	T (Å)	I_T (mA)	S (Sputtered atoms/ion)	from ref. 9
Cu	63.55	8.93	62.25	1.80	2.02	2.35, 1.20, 2.0
Mo	95.94	10.2	28.21	2.00	0.62	0.80, 0.64
W	183.85	19.3	14.08	1.50	0.41	0.57

ある微小面積 $dS' (= d x' d y')$ に到達する原子数は、 dS'/l^2 に比例するから、 dS' に到達する原子数は、次式で与えられる。

$$\frac{I(0) \cos^2 \theta dS'}{l^2} \dots\dots\dots (21)$$

これを基板全体について、一様として、ターゲットのある一点から、基板に到達する原子数 Φ' は、式 21 を積分して、

$$\Phi'(x, y) = \int_{-b'}^{b'} \int_{-a'}^{a'} \frac{I(0) \cos^2 \theta}{l^2} dx' dy' \dots\dots\dots (22)$$

これであたえられる、 $\Phi'(x, y)$ が、ターゲットの全体で、同様に考えられるから、式 22 は、ターゲットの微小面積 $dS (= d x d y)$ を与えて、基板に到達する総原子数 Φ は、

$$\begin{aligned} \Phi &= \int_{-b}^b \int_{-a}^a \Phi'(x, y) dx dy \\ &= \int_{-b}^b \int_{-a}^a \int_{-b'}^{b'} \int_{-a'}^{a'} \frac{I(0) \cos^2 \theta}{l^2} dx' dy' dx dy \quad (23) \end{aligned}$$

ここで、 $\cos \theta = R/l$, $l^2 = (x-x')^2 + (y-y')^2 + R^2$ で与えられる。基板は、半径 r の円板であるから、基板上の微小面積 dS' は、円筒座標系 (r, θ) を用いて、 $dS' = r dr d\theta$ で与えられる。また、ターゲットから放出される全原子数は、ターゲット面積が $4ab$ で表わされるので、 $4I(0)ab$ である。

従って、係数 A は、式 23 及び、上記の説明より、次式で与えられる。

$$\begin{aligned} A &= \frac{I(0) \int_{-b'}^{b'} \int_{-a'}^{a'} \int_{-b}^b \int_{-a}^a \frac{\cos^2 \theta}{l^2} dx' dy' dx dy}{4I(0)ab} \\ &= \frac{\int_{-b}^b \int_{-a}^a \int_0^r \int_0^{2\pi} \frac{R^2 r}{l^4} d\theta dr dx dy}{4ab} \dots\dots\dots (24) \end{aligned}$$

これは、4重積分を含む式であるので、台形公式を用いて、数値解析を行った。

この結果は、 $A=0.04112$ となっており、近似解析した値 0.0387 に近いものである。これにより、Table III に示したスパッタ率は、ある程度信頼できる値であると思われる。スパッタ率が、文献 (9) の値より小さくなった原因としては、係数 A を求めるための仮定が全て正しいとは、考えられないからである。

5. UHV スパッタ装置への展望

5.1 UHV 用スパッタ蒸着源

高真空装置では、第3章に述べた通り、主弁を半開させて、アルゴンガスを常にチャンバー内に流入し、アルゴン雰囲気中の圧力を一定に保つことができ、アルゴン放電及びそれによるスパッタリングが安定に行なわれた。しかしながら、UHV 装置では、排気速度が比較的小さいので、主弁を閉じ、アルゴンガスを留めて、放電及びスパッタリングを行わなくてはならない。このことは、現スパッタ源を、UHV 装置で使用する時の問題点である。

ここでは、UHV 用に製作したスパッタ源を実際に UHV 装置内で、使用するために、必要な改良点と操作について、それらの概括を述べる。

(1) 改良点

スパッタ源の大きさは、適当であると思われるが、(a)

各電極の配置（スパッタ幾何）と、(b)ガス源の減少について、改良点を箇条書きに述べる。

(a)○正確なターゲット電流と、スパッタされるターゲット面積を決定するために、ターゲットにアパチャーをつける。

○放電は、フィラメント及び、プレートの形状とその距離の強関数であるので、これらに工夫をこらし、アルゴン雰囲気圧力 10^{-4} Torr 台で、放電ヒステリシスを減少させ、安定な放電を行うようにする。

(b)○ガス源としてふるまい得る、集束チューブとプレートボックスを一体化する。

○フィラメントを納めている、フィラメントボックスは、スパッタ源の中で、最も大きいガス源と考えられるので、これと、集束チューブを、マイカ等で、シャ断し、集束チューブへの熱伝導を小さくする。

以上のことが、UHV 装置で用いる場合の改良点として、提げられる。

参 考 文 献

- 1) 麻蒔立男：薄膜作成の基礎(日刊工業新聞社, 1977).
- 2) 織田善次郎：エレクトロニクス, 昭和48年10月号 1283.
- 3) 細川直吉：真空 19 (1976) 329.
- 4) 織田善次郎, 麻蒔立男, 牟田弘樹, 溝延孝夫：応用物理 36 (1967) 282.
- 5) 細川直吉：真空 14 (1971) 211.
- 6) T. C. Tisone and P. D. Cruzan : J. Vac. Sci. Technol. 12 (1975) 1058.
- 7) W. D. Ryden, I. B. Bindell, L. H. Holshwander and E. F. Labuda : J. Vac. Sci. Technol. 15 (1978) 290.
- 8) 本多侃士：気体放電現象(東京電機大学出版局, 1970).
- 9) G. Carter and J. S. Colligon : Ion Bombardment of Solid (Heinemann, 1968).