

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 26 年 5 月 29 日現在

機関番号：13901

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2012～2013

課題番号：24654189

研究課題名(和文)ターゲットを均一に利用する無磁場マイクロ波スパッタ製膜

研究課題名(英文) Magnet-free microwave sputter deposition with uniform target utilization

研究代表者

豊田 浩孝 (Toyoda, Hirotaka)

名古屋大学・工学(系)研究科(研究院)・教授

研究者番号：70207653

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 2,900,000円、(間接経費) 870,000円

研究成果の概要(和文)：本研究は、従来のスパッタ法にはない新しいスパッタ装置として、低圧力で均一な無磁場マイクロ波プラズマ生成を利用し、2次元的に面内均一にスパッタ成膜をおこなう装置の実現のための指針を得ることを目的とする。その結果、マイクロ波を用いた低圧力でのプラズマ維持に成功し、さらに高周波電力を重畳印加することにより、10cm四方にわたり誘電体材料の均一なスパッタ成膜に成功した。これは、従来の磁場を用いたスパッタ成膜では実現できない革新的な成果であり、今後さまざまな電子デバイス形成における応用が期待できる。

研究成果の概要(英文)：The purpose of this research is to obtain guideline for the development of two-dimensionally-uniform sputtering system using microwave plasma production. Through this research, low pressure plasma production using microwave power is successfully realized. Furthermore, by applying RF power to the microwave plasma, uniform dielectric sputtering is realized with 10 cm square area. This is innovative result that cannot be realized by conventional sputtering system that utilize magnetic field. The result obtained by this project can be applied to various electronic device manufacturing.

研究分野：数物系科学

科研費の分科・細目：プラズマ科学

キーワード：マイクロ波 スパッタ 表面波 均一プラズマ

1. 研究開始当初の背景

マグネトロンプラズマは、工業的に広く応用されているが、磁場の利用によりプラズマが強い空間構造を持つため、ターゲット材料利用領域の偏在やスパッタ膜厚および膜質の面内不均一を引き起こしている。しかし、本プラズマ源は高密度プラズマ生成に磁場を用いているため、不均一を避けることが出来ず、この課題を根本的に解決できるスパッタ手法は世界的にも未だ見出されていない現状にある。

本研究代表者は、これまで長年にわたり薄膜堆積や表面改質プロセスへ応用可能な高密度・大面積マイクロ波プラズマ源を開発してきた。また、マグネトロンプラズマにおける希ガスや負イオンの高エネルギー粒子のエネルギー分布・空間分布をエネルギー分解可能な質量分析法により解析し、高エネルギー負イオンのエネルギー分布の微細構造の発生原因を世界で初めて明らかにする等の成果を得ている。このような中、本研究代表者はマイクロ波導入方法の工夫により従来よりも一桁以上も低いmTorr 台の圧力でも放電維持が可能な無磁場・高密度マイクロ波プラズマの生成に成功した。そこで、この成果の展開として、本プラズマ源の「スパッタ製膜が可能な低圧力での高密度プラズマ生成」という特徴を活かし、表面波伝播に利用する誘電体をスパッタターゲットとし、ター

ゲット背面に電極を配置してパルスバイアス電圧を印加することにより、面均一なスパッタ源の実現が可能であるとの着想に至った。

2. 研究の目的

本研究は、低圧力で均一な無磁場マイクロ波プラズマ生成とこれを用いた面内均一スパッタ装置の実現のための指針を得ることを目的とする。具体的には、本研究者が独自に開発した「低圧力・無磁場・高密度マイクロ波プラズマ」の面内均一化の指針を得るとともに、本プラズマ源を用いたスパッタ製膜を試み、バイアス印加がプラズマに及ぼす影響等の調査をもとにバイアス印加環境下で面内均一なプラズマ生成とスパッタ製膜を実現するための指針を得ることを目的とする。

本研究で提案するプラズマ源は、従来にない低圧力でのプラズマ維持可能でありプラズマ生成の物理の観点からも非常に興味深い現象であるという特色を持っている。また、すでに低圧力・高密度プラズマ生成に成功していることから、本装置を用いたスパッタ製膜は実現可能であると考えられ、本研究成果は学術的な観点だけでなく、工業的応用の観点からも従来の概念を大きく変える可能性を秘めている。具体的には、均一製膜がきわめて重要となる半導体製造プロセスやフィルム上への機能性薄膜堆積など、さまざまな分野への応用の可能性が期待されるものである。

3. 研究の方法

本研究は図2に示すような表面波プラズマを用いた無磁場スパッタ装置を用いて実験を行った。実験には直径38cm、長さ30cmの円筒形のチャンバを用いており、Arを導入することでプラズマを生成する。装置はターボ分子ポンプとロータリーポンプで排気する。装置チャンバの一端に本実験に用いるスパッタ装置を装着している。図3に新規スパッタ装置の概略図を示す。導波管の端には石英で真空封止したスロットアンテナを設置してある。さらにその先に石英を介して誘電体ターゲットにマイクロ波を伝搬させ、マイクロ波プラズマを生成する。さらに100×100mmの誘電体ターゲットの背面には80×80mmの銅板が設置されており、この銅板にRF電圧をかけることによって誘電体表面に負バイアスを印加する。アンテナ石英サイズ、誘電体背面の銅板サイズについては電磁界シミュレーションソフトウェアを用いた表面波伝搬のシミュレーションによって最適とされた値を用いている。マイクロ波電力を印加することで放電させ、RF電力を印加し負バイアスをかけることで誘電体ターゲットの

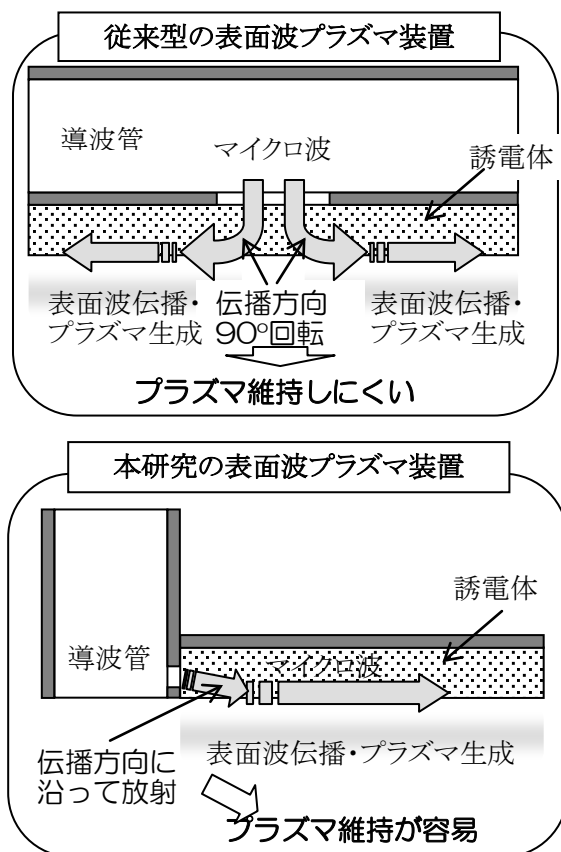


図1 本研究の装置概念図

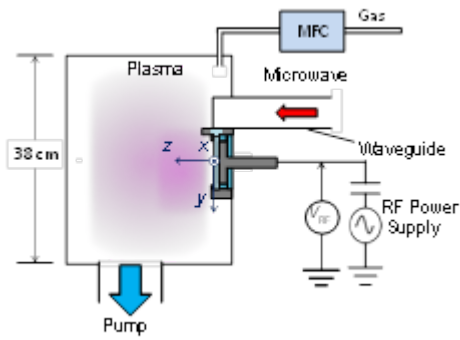


図2 実験装置概略図

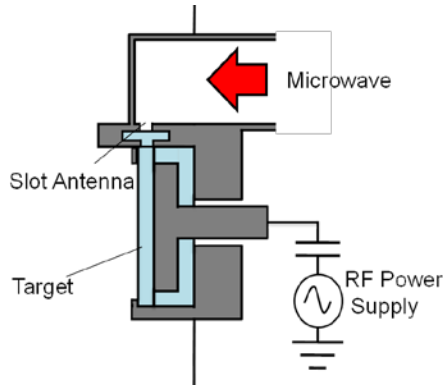


図3 スパッタ装置概略図

スパッタをおこなう。

また、本装置にプローブを挿入し、 $x$  軸、 $y$  軸、 $z$  軸方向に移動させることでプラズマ密度の空間分布を測定した。さらにガラス基板を  $x$  軸、 $y$  軸平面に平行に挿入することでスパッタ堆積をおこない、膜厚段差計を用いて堆積速度およびその空間分布について計測を行った。また、エネルギー分析機能を持った四重極質量分析計を用いることで、酸素負イオンのエネルギー測定をおこない、ターゲット表面のバイアス電圧の評価をおこなった。

#### 4. 研究成果

##### (1) 放電維持圧力評価

Ar を導入し、マイクロ波電力と RF 電力を重畳させることでプラズマを生成する。その後、チャンバとターボ分子ポンプの間に取り付けられたコンダクタンスバルブにより圧力を調整し、プラズマが消滅する時の圧力を測定し、その時の圧力をプラズマ維持最低圧力とした。

図4にマイクロ波投入電力対プラズマ維持可能な下限の圧力を測定した結果を示す。斜線で囲まれている部分でプラズマが生成されていることを表している。まず、マイクロ波電力のみで放電維持最低圧力を測定したところ、マイクロ波の電力を増加させることで、プラズマ維持圧力領域が拡大し、700W

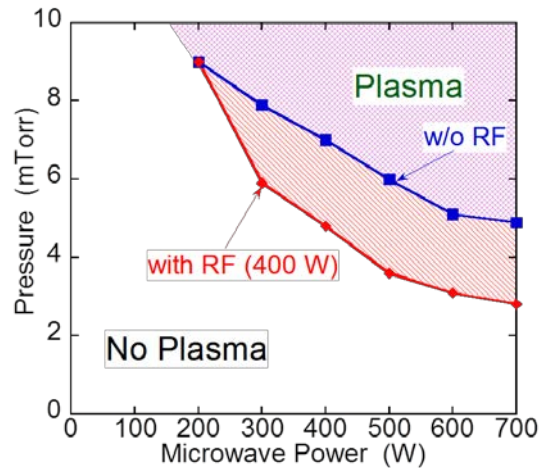


図4 放電維持最低圧力

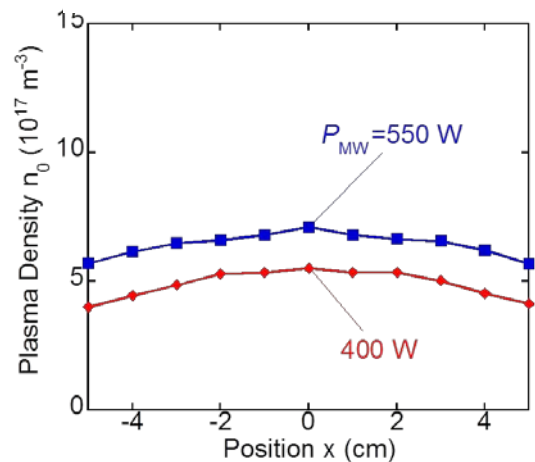


図5 プラズマ密度空間分布

においてスパッタが可能な5 mTorr でプラズマが維持できることが確認された。さらに、マイクロ波電力で生成された表面波プラズマに RF 電力を重畳し、プラズマ維持最低圧力を測定したところ、マイクロ波電力 700W、RF 電力 400 Wにおいて、さらに放電維持圧力は停電でき、3 mTorr でも放電維持可能であることが確認された。これは、RF 電力を重畳することでプラズマ密度が上昇し、より容易に表面波が伝搬するために必要なプラズマ密度がえられたためと考えられる。

##### (2) プラズマ密度および成膜速度評価

ガス流量を一定にし、マイクロ波電力 400 W、チャンバ圧力 8 mTorr、 $y=0$  cm、 $z=3$  cmにおいてプラズマ密度  $x$  軸方向の変化をラングミュアプローブで測定した結果を図5に示す。プラズマ密度は石英中心付近でやや高くなっているものの、原点から左右対称の比較的平坦な空間分布となっていることが確認された。

次に、マイクロ波電力 400W、ターゲット基板間距離 12 cm、チャンバ圧力 8 mTorr でガラス基板上に成膜をおこなう際に、RF 電力 400W の入射した条件 (with RF) と、入射していない条件 (w/o RF) 2 つの成膜速度の  $x$  軸方

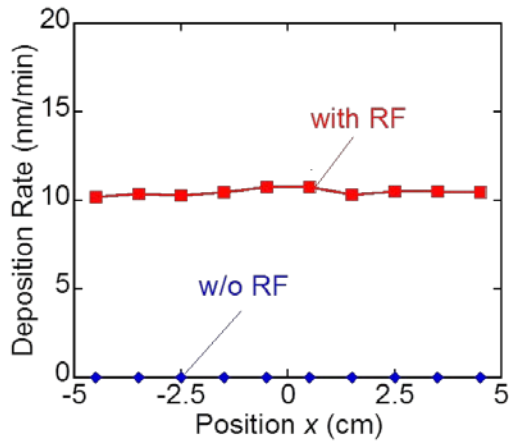


図6 x方向成膜速度空間分布

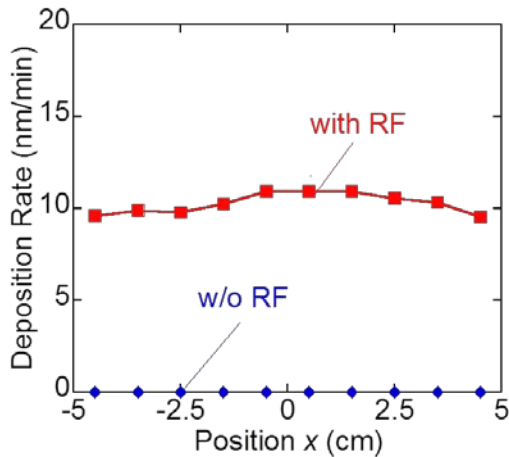


図7 y方向成膜速度空間分布

向空間分布、y軸方向空間分布を測定した。その結果を図6および7に示す。結果より、RF電力を印加せず、マイクロ波電力のみでプラズマを生成し多場合は、スパッタ成膜はおこなわれていないことがわかる。これは表面波プラズマのみではターゲットに負バイアスが発生せず、スパッタが行われないことを示している。一方、RF電力印加時では10 nm/min程度の堆積速度が確認される。これは、RFバイアス電力により誘電体表面に負バイアスが発生し、スパッタ原子がたたき出される閾値である表面結合エネルギーを超えたイオンがターゲット表面に照射されていることを示している。

### (3) スパッタ成膜速度の検証

薄膜堆積速度 $D_{sput}$ は以下に示す式のように、スパッタイールド $Y_{SiO_2}$ とターゲットに向かうイオンフラックス $\Gamma_i$ から求めることができる。

$$D_{sput} = \frac{K \cdot Y_{SiO_2} (V_{ts}) \cdot \Gamma_i (V_{ts})}{n_f}$$

ここで、 $K$ は係数、 $V_{ts}$ は最大シース電圧、 $n_f$

は薄膜密度を表している。

スパッタイールドはシースで加速されたアルゴンイオンのエネルギー、つまりシース電圧に依存することが知られており、それはターゲット表面電位から求めることが可能である。しかし、本装置ではターゲットが絶縁体となっているためターゲット表面電位を直接測定することが困難である。そこで、酸化絶縁体スパッタ時に生成される酸素負イオンに着目した。酸素負イオンはターゲットから放出された後、シースによってエネルギーを受けて加速しプラズマ中に飛び出す。つまり、酸素負イオンのエネルギー分布を計測することは、絶縁体表面に形成されるシース電圧の測定につながる。

RF電力400 W、チャンバ圧力8 mTorr、マイクロ波電力を250 Wから700 Wまで変化させた時の酸素負イオンエネルギー分布計測の結果を図8に示す。横軸が酸素負イオンのエネルギー、縦軸に正規化した信号強度をとっている。マイクロ波電力を増加させていくことで酸素負イオンのピークエネルギーが減少していくことが確認された。これは、マイクロ波電力を増加させることで薄膜にダメージを与える酸素負イオンのエネルギーを低減させたことを示すとともに、マイクロ波電力の増加がターゲット表面バイアス電圧を低下させていることを示している。したがって、マイクロ波電力はターゲット材料をスパッタさせるためのイオンフラックスの増加に貢献する一方で、イオンエネルギーを低減することになり、適度なスパッタ成膜速度を得るためにはこれらの最適化の検討が重要であることが示唆される。

堆積速度を求めるためにはスパッタイールドを知る必要がある。ここで、ターゲット表面電位をもとにしたスパッタイールドを評価していく。文献値から $SiO_2$ スパッタイールドの経験式を以下に示す。

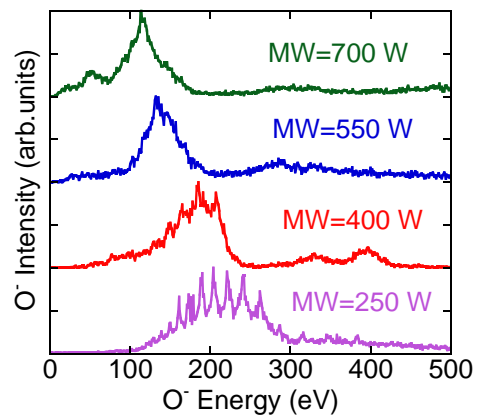


図8 酸素負イオンエネルギー分布

$$Y_{\text{SiO}_2} = 1.67 \times 10^{-3} (V_{\text{ts}} [\text{V}] - 100 [\text{V}])$$

[atoms/ion]

このように 100 eV を閾値としてターゲット表面電位  $V_{\text{ts}}$  に比例する形となっている。よって、負イオンエネルギー分布測定をもとにターゲット表面電位  $V_{\text{ts}}$  を求めることで任意のスパッタ条件下におけるスパッタイールドを評価することが可能となる。

次に、スパッタ堆積速度を求めるためにはスパッタイールドとともにイオンフラックスを知る必要がある。そこでターゲット表面電位をもとにしたイオンフラックス評価をおこなった。本装置のような RF 電力を印加する構造では、ターゲット表面にチャイルドリングミュアシースが生成されること知られている。そのため、ターゲットに入射するイオンフラックスはチャイルドリングミュア則にのっとって以下の式で表すことができる。

$$\Gamma_i = \frac{J}{e}$$

$$\frac{1}{e} \cdot \frac{4}{9} \cdot \epsilon_0 \left( \frac{2e}{M} \right)^{1/2} \frac{V_{\text{ts}}^2}{d_{\text{ts}} (V_{\text{ts}})^2}$$

ここで、 $d_{\text{ts}}$  はシース厚さであり、シース厚さからイオンフラックスを評価することが可能であることがわかる。そこで、ターゲット表面電位と背面の RF バイアス電極の RF 電圧の差から、シース厚さを以下の過程により評価した。まずターゲット表面電位は、ターゲットにより形成される静電容量とシースにより形成される静電容量の分割により

$$V_{\text{ts}} = \frac{Z_s}{Z_t + Z_s} V_{\text{RF}}$$

と表すことができる。ここで  $Z_t$  および  $Z_s$  はそれぞれターゲットおよびシースの静電容量にて形成されるインピーダンス、 $V_{\text{RF}}$  は RF バイアス電極に印加される RF 電圧である。これをもとに、シース厚さは

$$d_{\text{ts}} = \left( \frac{V_{\text{RF}}}{V_{\text{ts}}} - 1 \right)^{-1} \times \frac{\epsilon_0 d_t}{\epsilon_t}$$

と表すことができる。ここで、 $\text{SiO}_2$  ターゲットの誘電率  $\epsilon_t$  は  $3.78 \epsilon_0$ 、厚さ  $d_t$  は 10 mm であるため、 $V_{\text{ts}}$  と  $V_{\text{RF}}$  を計測することにより、おおよそのシース厚さ  $d_s$  を見積もることが

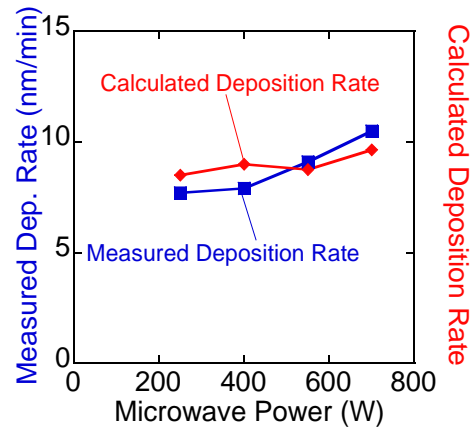


図9 ターゲット表面電位から求めた堆積速度と成膜実験堆積速度の比較

可能である。なお、一例としてマイクロ波電力 400 W、RF 電力 250 W、チャンバ圧力 8 mTorr における計測結果よりシース厚さを見積もると 1 mm 程度となった。

以上のようなモデルをもとにターゲット表面電位から求めた堆積速度と、成膜実験によって求めた堆積速度を比較した結果を図9に示す。成膜実験によって得られた結果は、RF 電力 400 W、チャンバ圧力 8 mTorr、ターゲット基板間距離 12 cm としてマイクロ波電力を変化させ、ターゲット中央の位置の堆積速度を測定したものがある。図よりターゲット表面電位測定から得られた堆積速度のマイクロ波電力依存性は成膜実験による堆積速度と定性的に傾向が一致していることがわかる。これより、今回用いた簡単なスパッタモデルによっても、成膜速度のマイクロ波電力依存性を説明できることが示された。

(5) まとめ、

本研究では、マイクロ波プラズマを用いた無磁場スパッタ装置の研究として、スパッタ装置の最低維持圧力計測、プラズマ密度計測、成膜物の成膜速度空間分布、酸素負イオンエネルギー分布計測をおこなった。

その結果、本装置を用いることにより、3mTorr の低圧力でもプラズマ生成が可能であり、また従来のスパッタ成膜装置の成膜速度に対してそんな色ない成膜速度が実証されるとともに、スパッタ成膜速度の空間分布が当初の目的通り均一なものが得られることを実証できた。

## 5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計1件)

- (1) 豊田浩孝, 酸化物ターゲットを用いた RF マグネトロンプラズマにおける高エネルギー粒子の挙動 Journal of Vacuum Society of Japan Vol. 57No.3

pp80-83 (2014).

[学会発表] (計4件)

- (1) T. Noda and H. Toyoda: Development of Magnet-Free Sputtering System for Dielectric Film Deposition, 35<sup>th</sup> Int. Sympo. Dry Process, (Jeju, Korea, 2013).
- (2) T. Noda and H. Toyoda: Development of Magnet-Free Sputtering System for Dielectric Film Deposition with Surface-wave Excited Plasma, 66<sup>th</sup> Gaseous Electronics Conference (Princeton, USA, 2013).
- (3) T. Hagihara, T. Noda and H. Toyoda: Development of Magnet-Free Uniform Sputtering System by RF and Microwave Power Superposition, 8<sup>th</sup> Int. Conf. on Reactive Plasmas (Fukuoka, Japan, 2014).
- (4) T. Hagihara, T. Noda and H. Toyoda: Magnet-Free Sputtering System Using Surface Wave Plasma, 2014 Int. Sympo. on Plasma and Its Application to Nitride and Nanomaterials (Nagoya, Japan, 2014).

[図書] (計0件)

[産業財産権]

- 出願状況 (計0件)
- 取得状況 (計0件)

## 6. 研究組織

(1) 研究代表者

豊田浩孝 (名古屋大学)

研究者番号: 70207653