

基板表面磁界がスパッタ薄膜結晶配向性に及ぼす影響

丸本 洋*・松田 良信**・篠原 正典**・藤山 寛**

Influence of Magnetic Field near Substrate Surface on Crystal Orientation of Sputtered Thin Films

by

Hiroshi Marumoto*, Yoshinobu Matsuda**, Masanori Shinohara** and Hiroshi Fujiyama**

We investigated the influence of magnetic field near substrate surface (B_{sub}) on the crystal orientations of iron (Fe) thin by direct current (DC) magnetron sputtering deposition. We found that the effect depends on the iron deposition rates. While the crystal orientation of Fe thin films varied from Fe (110) to Fe (200) at the deposition rate of 9 and 12nm/min with the increase of B_{sub} , the crystal orientation did not change at the low deposition rate such as 4nm/min.

1. はじめに

電子デバイスの高性能化は、主にそのLSIを微細化することで実現され、そのプロセスルールは2010年では45nmにまで達すると予想されている⁽¹⁾。原子レベルオーダーでの微細化や構造制御を実現するためには、加熱プロセスによる半導体および金属配線での固相拡散を防止するためにも、低温プロセスが重要である。しかし、そのようなナノオーダーのLSIを実現、ことは、従来のプロセス技術の延長では困難であるといわれている。そこで我々は、次世代プロセス技術の一つとしての低温プラズマプロセスに着目した。プラズマプロセスは半導体薄膜堆積および微細加工には不可欠な技術である。それゆえ、これまで活発に研究・開発がな

されてきたが、いまでも十分に理解されていない。特に、プラズマプロセス中の気相・固相界面と固相バルク及び気相バルクの間には存在するナノスケールの遷移領域である『サブサーフェス(Subsurface)』(Fig.1)については、ほとんど調べられていない。この『サブサーフェス』領域は、まさに薄膜形成を左右する最前線になっており、この領域を制御することが重要である。これが制御できれば、熱以外のパラメータによりプロセス制御が可能になると考えられる。そこで本研究では、『サブサーフェス』領域を基板表面近傍の磁界により制御することで、結晶配向性を制御することを目的としている。

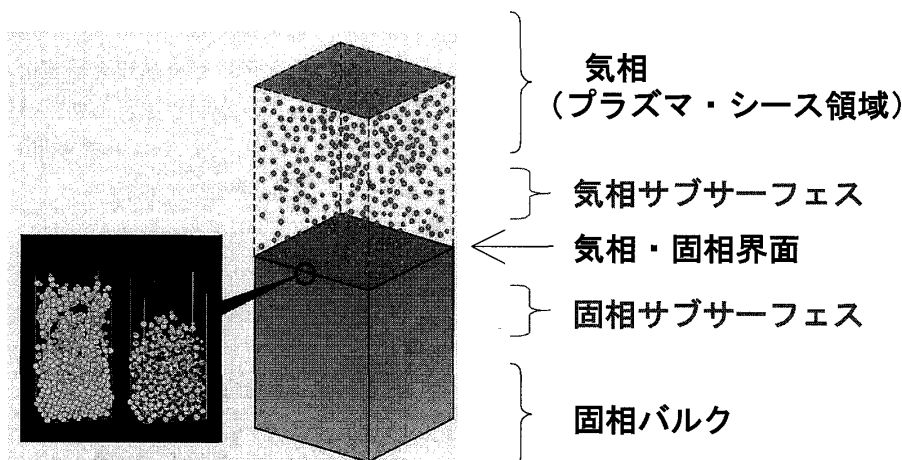


Fig.1 サブサーフェスの定義

平成15年4月18日受理

*大学院生産科学研究科 (Graduate School of Science and technology)

**電気電子工学科 (Department of Electrical and Electronics Engineering)

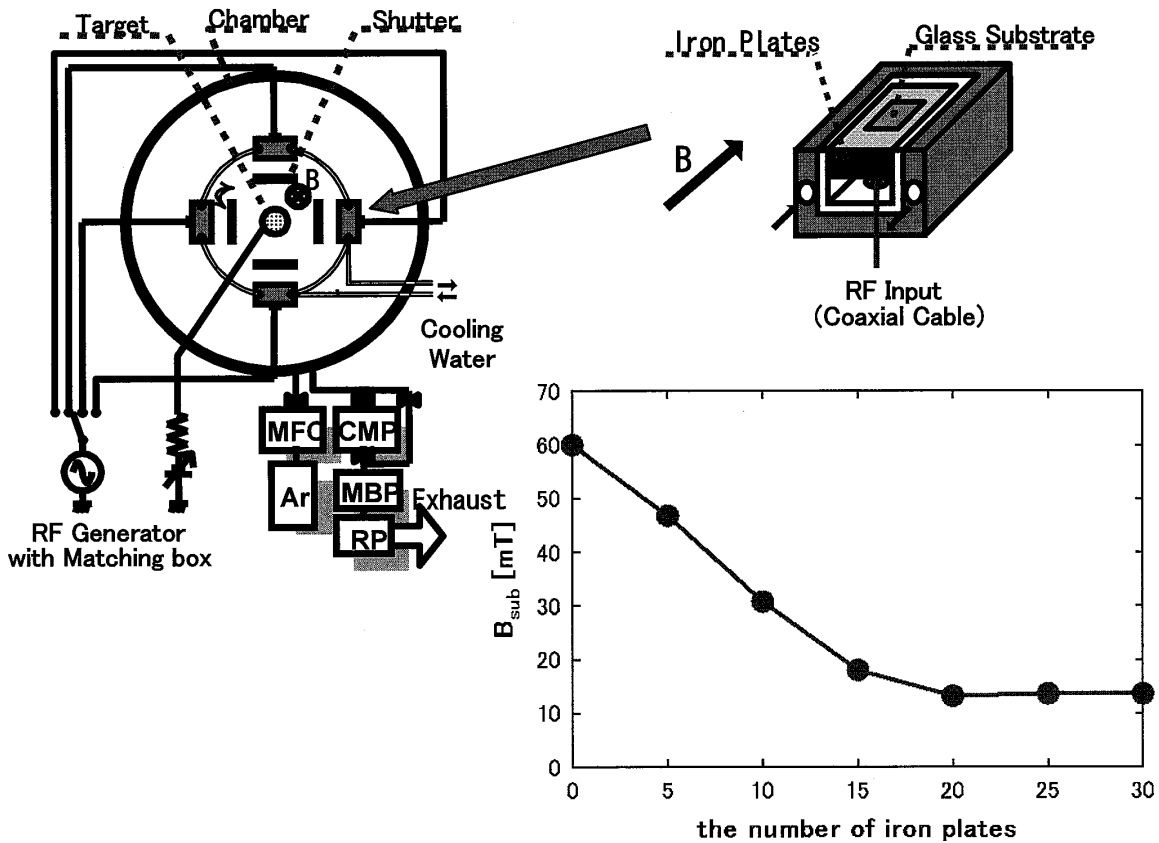


Fig.2 実験装置図

これまでに切明, 福山, 白石らが, 基板表面近傍の磁界 (B_{sub}) が鉄 (Fe) スパッタ薄膜結晶配向性に及ぼす影響について報告してきたが [2-5], 残留ガス (O_2 , N_2)・プラズマの点で実験の再現性が乏しいなどの問題点があった. そこで, これらの点の改善を試み, 基板表面近傍の磁界が鉄スパッタ薄膜の結晶配向性に及ぼす影響, また, 成膜速度と基板表面付近のプラズマパラメータが Fe スパッタ薄膜結晶配向性の変化に対する影響について調べた.

2. 実験

本実験で Fe 成膜は, 動作ガスとして Ar を用い, 円筒同軸型ターゲットを用いて DC マグネトロンスパッタを行った. Fig.2 に本実験で用いた基板ホルダと実験装置全体図を示す. 基板の裏側に鉄板を設置することで基板表面近傍の磁界を調節できる構造になっている. 本実験では, 基板表面から 2mm 上の磁束密度をガウスメータにより測定し, その値を基板表面磁界パラメータとして用いた. それぞれ厚さの異なる鉄板を挿入した基板ホルダを 4 つ, Fig.2 に示すようにターゲットの上下左右に 6cm の距離に設置した. こうすることで, 大気開放せずに同時に 4 つの薄膜サンプルを同じ成膜

環境 (残留ガス, プラズマの状態) で形成することが可能である. また, 成膜中の基板温度上昇による結晶性の変化をできるだけ避けるために, 基板ホルダを水冷し, 成膜中の基板ホルダの温度を一定 (15°C) に保った. 基板に用いる結晶により薄膜形成が影響を受けないように, 基板にはアモルファスであるガラス基板を用いた. 基板はアセトンで 30 分間超音波洗浄した基板を取り付けた後, ベース圧力が 5.0×10^{-6} Torr 以下に到達するまで真空引きを行った. 成膜前には, RF プラズマ照射による基板洗浄を 5 分間, ターゲットのプレスパッタ 3 分間それぞれ行った. Fe スパッタ薄膜サンプルの成膜条件を Table 1 に示す. ただし, 基板表面

ターゲット	Fe
基板	ガラス
ターゲット-基板間距離	6cm
ベースプレッシャー- P_{base}	3.9×10^{-6} Torr
Arガスプレッシャー- P_{Ar}	2.5mTorr
外部印加磁界B	647Gauss
投入電力密度	$0.83\text{W}/\text{cm}^2$
成膜速度	5.6nm/min
基板表面磁界 B_{sub}	83, 269, 415, 647 Gauss

Table 1 成膜条件 1

ターゲット	Fe		
基板	ガラス		
ターゲット-基板間距離	6cm		
ベースプレッシャー P_{base}	4.7×10^{-6} Torr		
Arガスプレッシャー P_{Ar}	2.5mTorr		
外部印加磁界B	647Gauss		
投入電力密度	0.60W/cm ²	1.43W/cm ²	2.53W/cm ²
成膜速度	4nm/min	9nm/min	12nm/min
基板表面磁界 B_{sub}	83, 269, 415, 647 Gauss		

Table 2 成膜条件 2

磁界 B_{sub} には、基板表面から 2mm 上の磁束密度をガウスメータにより測定した値を示している。この時の膜厚は、表面粗さ計の測定により 140nm であり、成膜速度はこの値と成膜時間から算出した。また、基板表面磁界が異なる環境下において、成膜速度が Fe スパッタ薄膜結晶配向性に及ぼす影響についても調べるために、成膜速度をかえて Fe 薄膜の成膜を行った。そのときの成膜条件を Table2 に示す。成膜速度はターゲットに投入する電力ををかえることで制御した。それぞれの膜厚は、130nm であった。成膜後、得られた薄膜サンプルは、薄膜の酸化をできるだけ防ぐために、真空容器に保存した。そして、薄膜サンプルの結晶配向性は X 線回折 (X-Ray Diffraction; XRD) により調べた。

また、基板表面付近のプラズマパラメータの計測にはシングルプローブ法を用いた。

3. 結果と考察

3.1 基板表面近傍の磁界による結晶配向性の変化

Fig.3 (a) に、Table1 に示した条件で成膜した Fe 薄膜サンプルの XRD パターン図を示す。基板表面近傍の磁界 $B_{sub} = 83$ Gauss では Fe (110) のピークが見られるが、 $B_{sub} = 269$ Gauss 以上になると Fe (110) のピークは消滅し、Fe (200) のピークが現れる。Fig.3 (b) は、(a) の XRD パターンにおける Fe (110)/(200) ピーク強度比の変化を表面磁界の強さでプロットしたものである。 $B_{sub} = 83$ Gauss ではピーク強度比が 2.7 と強い。一方、 $B_{sub} = 269$ Gauss 以上で強度比の値はいずれも 1 以下であり Fe (200) のピークが強く現れていることがわかる。このことから、基板表面磁界 B_{sub} の増加に伴い、Fe スパッタ薄膜の結晶配向性が Fe (110) から Fe (200) へと変化することがわかる。

通常金属薄膜の結晶は表面エネルギーが最小となるように配向する。Fe 結晶は体心立方格子なので、外部から何も働きかけなければ面密度が高く安定な Fe (110) に配向する。しかし、Fe 結晶は {100} 方向に磁化容易軸が存在するため、外部磁界を印加した場合は、Fe

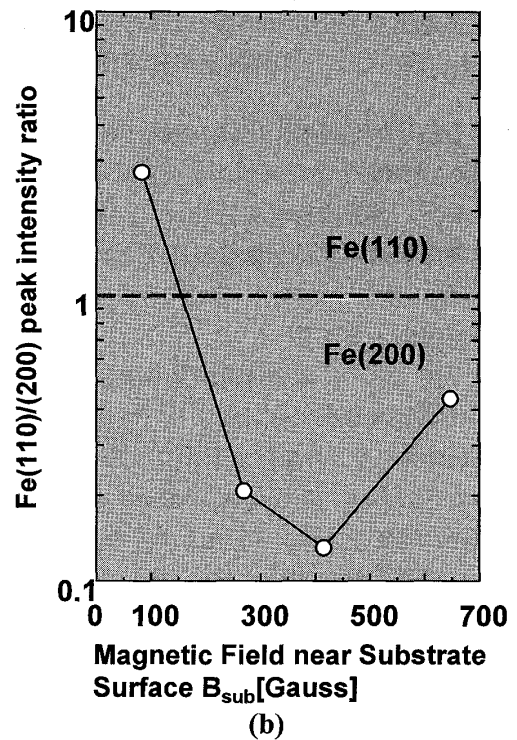
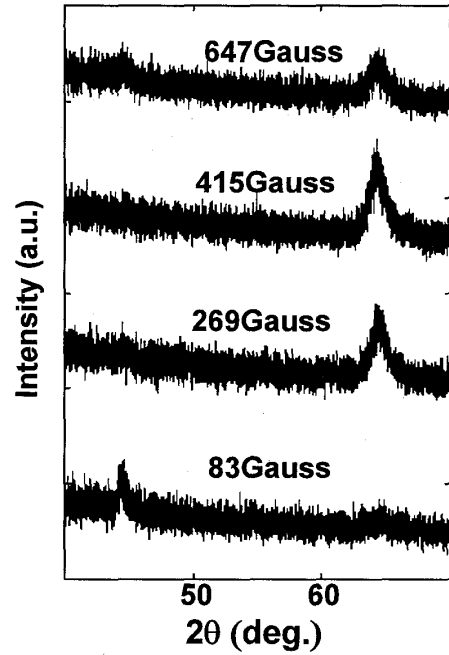


Fig.3 (a) 基板表面磁界をかえて形成した Fe 薄膜サンプルの XRD パターン
(b) Fe (110) と Fe (200) のピーク強度比の磁界依存性

結晶は自身の磁化容易軸が外部磁界と同じ方向を向くようがより安定な状態になる。これらから、基板表面磁界により Fe スパッタ薄膜の結晶配向性が変化するのは、基板表面近傍の磁界が小さい場合は Fe 薄膜の表面エネルギーが最小になるように Fe (110) に配向しやすく、基板表面近傍の磁界が大きくなるつれ、磁化容易

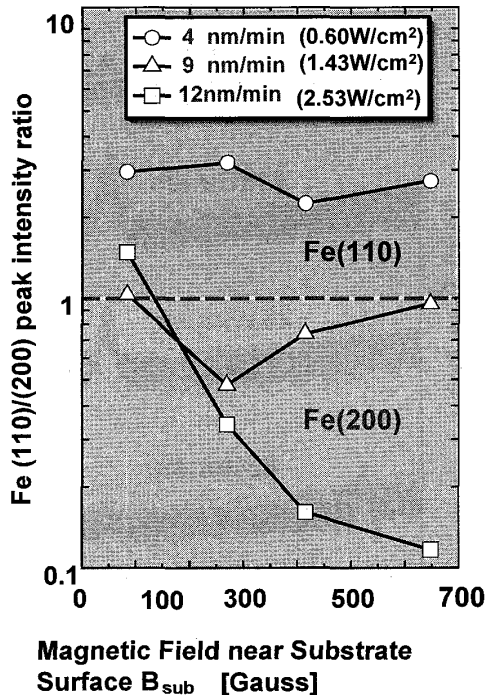


Fig.4 成膜速度を変化させ成膜した時の Fe (110) と Fe (200) のピーク強度比の磁界依存性

軸の方向と基板表面近傍の磁界の方向が一致するように Fe (200) に配向するためであると考えることができる。以上から、薄膜成長過程において、基板表面近傍の磁界は薄膜構造決定に影響を及ぼすと考えられる。

3.2 成膜速度による影響

本実験では、さらに成膜速度が基板表面磁界による Fe スパッタ薄膜結晶配向性変化に及ぼす影響について調べた。Table2 に示した条件で形成した Fe 薄膜の XRD パターンから、Fe (110) と Fe (200) のピーク強度比を表面磁界の強度でプロットしたものを Fig.4 に示す。ここから、成膜速度が 4 nm/min と低い場合には、いずれの基板表面磁界でもピーク強度比は 2.5 程度で基板表面磁界による Fe スパッタ薄膜の結晶配向成変化はほとんど見られない。一方、成膜速度が大きくなるにつれ、結晶配向性変化が顕著に現れる。すなわち、成膜速度が大きくなるにつれ、Fe 薄膜結晶配向性の基板表面磁界依存が顕著に見られるようになる。

基板表面磁界とターゲット投入電力密度（成膜速度）とそれによる Fe スパッタ薄膜の結晶配向性の関係を Fig.5 のように描くことができる。Fe スパッタ薄膜の結晶配向性変化には基板表面磁界の強さだけでなく成膜速度も影響し、基板表面磁界・成膜速度の両方の影響により Fe 薄膜の結晶配向性が変化している。

成膜速度による結晶配向性の変化が現れる原因の一つとして、真空槽内の残留酸素があげられる。鉄(Fe)

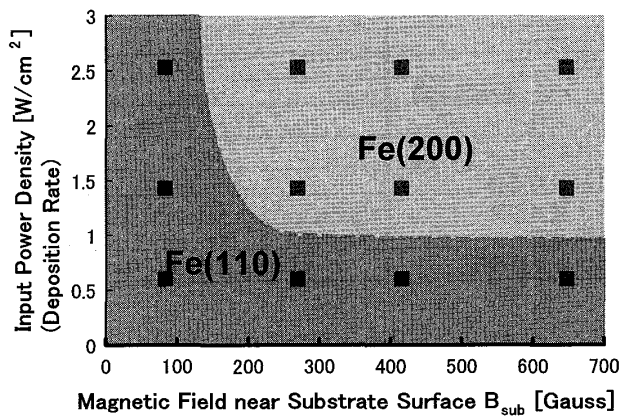


Fig.5 基板表面磁界・ターゲット投入電力と Fe 薄膜結晶配向性との関係

は残留酸素の影響で結晶性が変わることが知られている。また、酸素は反磁性物質であるため、磁界の影響により真空槽内での分布が変わること可能性もある。それゆえ、成膜速度が小さい場合には残留酸素の影響が大きく、表面磁界による結晶性の変化が観察できなかった。一方、成膜速度を大きい場合には残留酸素の影響が受けにくくなるため、表面磁界による結晶性の変化を観察できたということも考えられる。

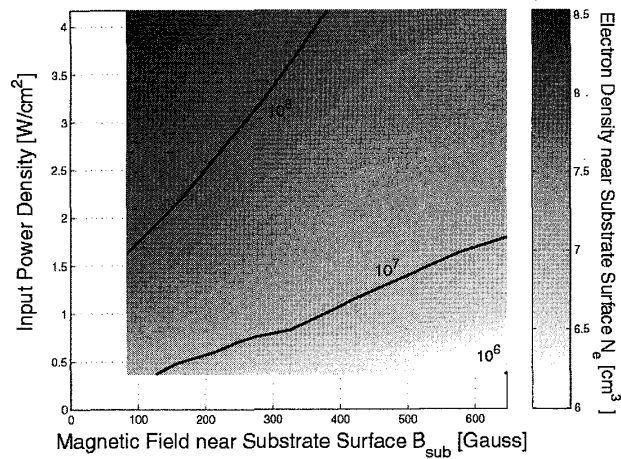
3.3 基板表面付近のプラズマパラメータ

薄膜は、基板がプラズマに露呈しているためにそのプラズマの影響を受けながら成長する。基板表面磁界とターゲット投入電力密度を変えたときの基板表面付近の電子密度、電子温度、イオン飽和電流の計測結果をそれぞれ Fig.6 に示す。

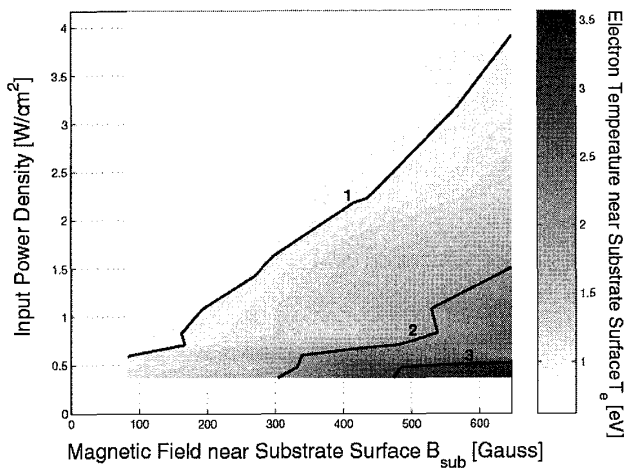
Fig.6 (a) に示されるように、基板表面付近の電子密度はおおよそ $10^6 \sim 10^7 cm^{-3}$ オーダであり、ターゲット投入電力密度が大きいほど、かつ基板表面磁界 B_{sub} が低いほどその密度は高い傾向にある。Fig.6 (b) に示されるように、基板表面付近の電子温度はおおよそ 0.5 ~ 3eV であり、電子密度の場合とは逆にターゲット投入電力が小さいほど、かつ基板表面磁界 B_{sub} が高いほどその温度は高い傾向にある。

Fig.6 (c) に示されるように、イオン飽和電流はおおよそ 0.001 ~ 0.008 mA 程であり、ほぼターゲット電力密度のみによってその値は変化し、基板表面磁界 B_{sub} による変化は電子の場合ほど見られない。これらの結果から、基板表面付近の電子のパラメータは基板表面磁界 B_{sub} の影響が顕著に現れているが、イオンの場合は基板表面磁界 B_{sub} の影響をさほど受けていないと推測される。

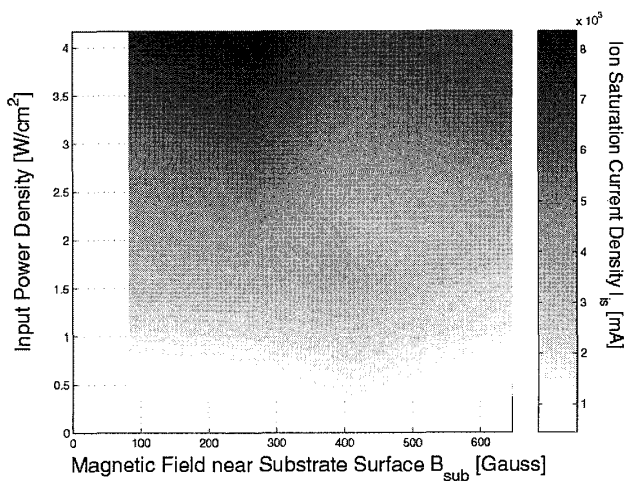
Fig.6 (a)(b) の電子パラメータの変化と Fig.5 でま



(a)



(b)



(c)

Fig.6 基板表面付近のプラズマパラメータの基板表面磁界・ターゲット電力密度依存性, (a) 電子密度 (b) 電子温度 (c) イオン飽和電流

とめた基板表面磁界・成膜速度と Fe 薄膜結晶配向性の関係を比べると、その関連性は見られない。よって、今回の実験条件下では、Fe 薄膜配向性変化に及ぼす基板表面付近の電子パラメータの影響はほとんどないと判断できる。Fig.6 (c)の結果から、本実験で成膜速度をターゲット投入電力密度で調節しているため、成膜速度の増加に伴い、基板に入射するイオンフラックスも共に増加する。それゆえ、イオンフラックスの増加により結晶性が変化する可能性も考えられる。確かに、Fig.4 における 83Gauss 時のピーク強度比を見ると、堆積速度が大きい場合には、しかし、今回得られた結果からだけでは、イオンフラックスによる結晶性の変化を断定するのは難しい。

4. まとめ

本研究では、成膜速度・基板表面磁界 B_{sub} が異なる条件で成膜した Fe スパッタ薄膜の結晶配向性を XRD により調べた。

Fe 薄膜結晶配向性は、基板表面磁界の増加に伴い Fe (110) から Fe (200) 変化した。Fe 薄膜の結晶配向性変化は、磁化容易軸が外部磁界と同じ方向を向くように配向するためであると考えられる。

基板表面磁界による Fe 結晶配向性の変化は、堆積速度が小さい場合には現れず、堆積速度が大きくなるにつれ顕著に現れる傾向にあった。これにより、この結晶配向性の変化には基板表面磁界の強さだけでなく成膜速度も影響することと考えられる。

しかし、今回得られた結果からでは結晶配向性変化のメカニズムを系統的に説明するには不十分であるので、更なる研究が必要である。

参考文献

- (1) ロードマップとして、日本版で STARC の <http://www.starc.or.jp/kensui/roadmap/> (2002 年現在)
- (2) 切明 渡, 基板表面磁界可変型反応性スパッタ法による窒化鉄薄膜の作製と構造制御に関する研究, 平成 8 年度長崎大学工学研究科修士論文
- (3) Wataru Kiriake, Kiyoshi Kuwahara, Hiroshi Iwanaga, Hiroshi Fujiyama, Surface and Coating Technology, 98 (1998) 1239
- (4) 福山英樹, 鉄スパッタ薄膜配向に及ぼす基板表面磁界の影響, 平成 10 年度長崎大学工学研究科修士論文
- (5) 白石弘興, 基板表面磁界およびパルス化による同軸円筒マグネトロン放電の高性能化に関する研究, 平成 13 年度長崎大学工学研究科修士論文