

学位論文の要旨

氏名 馬 淵 正 勝

学位論文題目 超高速回転基板上的スパッタ粒子衝突過程における気相-固相界面の連続性に関する研究

本論文は、 10^{-3} Torr の低圧環境における、基板近傍のスパッタ粒子とアルゴン原子の衝突が成膜過程に及ぼす影響を、基板を運動させることで明らかにし、自由な運動をする気相中の粒子と基板に拘束された基板上的粒子の境界には、緩やかに基板のポテンシャルに拘束された原子集団が存在することが明らかにした。この状態は希薄気体中における界面の動的特性を評価する上で重要である。

本研究ではスパッタ粒子の付着に大きな影響を与えるアルゴン粒子の衝突過程を解明するために基板の運動、入射粒子数の制限のためのセクター、基板表面への特異的結合領域の導入を行い、アルゴン原子とスパッタ粒子の衝突過程を検討した。

第1章は、序論である。スパッタ法による成膜過程の研究の位置づけとして、原子レベルの衝突過程と長時間、あるいは極めて多数の粒子が影響する界面の衝突現象をとりあげることの背景について論述している。実際の装置における、基板近傍の界面現象の解明は明らかではなく、衝突の初期条件と表面状態に複雑に依存する。新しいデバイス開発では微細化・微小化が進み薄膜の膜質や膜厚を精密に制御する必要性が生じ、成長過程はもちろんのこと基板の表面にさかのぼって精密制御が要求されている。成膜過程での基板表面における粒子の挙動解析および制御は従来のスパッタにおけるパラメータを変化させるだけでは困難であることを述べている。

第2章は、本研究に関する理論について論述した。マグネトロンスパッタリング法による薄膜成長過程の背景を論述した。半導体薄膜製造過程では、表面反応に必要な気体の流れの速さ、温度、圧力などを制御して、希望する条件の膜をつくっているが、個々の装置の「個性」といわれる「流れ」等の影響は明らかにされていない。スパッタされた高エネルギーの原子、分子は輸送されて基板表面でその運動エネルギーを失い、表面に付着し成長する。その過程においてスパッタ粒子の輸送にアルゴン原子は密接に影響するためアルゴン粒子の挙動について述べている。

第3章は、実験装置と実験方法について論述した。セクターによる入射粒子数の制限に基づく衝突数頻度の影響と入射粒子の入射角度分布の影響を述べ、基板の超高速回転運動による希薄

なアルゴンの流れとスパッタ粒子の作用による原子輸送をモデル化した。2種類のセクター導入により粒子の衝突頻度をパラメタとして、基板表面の粒子衝突過程の実験結果を考察するモデルを提案した。

第4章は、実験結果について論述した。一様な基板上の成膜と、表面に特異領域を導入した場合の成膜を行ない、基板を静止させた場合と回転させた場合の付着率の測定結果を議論した。基板静止時においては、一様な衝突条件を提供する長方形のセクターでは成膜組成の位置依存性はなかったが、扇形セクターでは、基板への入射角度が増加するにつれて、組成が角度依存して30%程度変化する現象が見出された。この組成変化は構成元素の中で最も質量の大きいTaにおいて顕著であった。

基板回転時には組成は、周速度に依存した。長方形セクターでは、周速度の増加につれて原子の表面数密度は減少し、減少の大きさは、重元素ほど大きい質量依存性を示した。一方、扇形セクターでは、周速度の増加につれて、原子の表面数密度は増加し、周速度の増加に対し、原子の表面数密度はいずれ元素でも飽和した。特異領域をEtchingにより基板面に導入することで、局所的な衝突の影響がどのように基板上で伝播するかを明らかにした。基板と入射粒子の衝突の結果、基板近傍に緩やかに拘束された粒子は、表面近傍のアルゴン原子と共に運動し表面相を形成している。表面相内の原子は、入射アルゴン原子との衝突で拡散が促進されていることが明らかになった。表面相内の粒子状態は、基板の周速度に依存し、周速度160m/s以上で顕著に変化した。

第5章は、実験結果の解析について論述した。入射スパッタ粒子の一次付着率 α と二次付着率 β をモデルより計算した。スベリによる矛盾は、表面相の導入で解消し、気相-表面相界面の速度、および、固相-表面相界面の速度は連続にすることができた。拡散を考慮した組成分布の空間変化は理論結果とほぼ一致した。これらより本実験モデルの妥当性を検証した。

第6章は、実験結果と解析結果に関する考察である。アルゴン粒子の基板表面近傍における衝突過程とスパッタ粒子の付着確率の速度依存性を実験的に明らかにし、Etchingによる特異領域の導入により局所的な衝突の影響が、成膜にどのように影響しているか明らかにした。基板表面には、厚さ1nmの表面相が存在し、この領域の特性が成膜結果を支配していることを明らかにしている。

第7章は、本研究の結論である。

論文審査の要旨

報告番号	理工論 第 号	氏 名	馬淵 正勝
審査委員	主 査	小原 幸三	
	副 査	石田 尚治	井上 政義
		寺田 教男	

学位論文題目 「超高速回転基板上的スパッタ粒子衝突過程における気相-固相界面の連続性に関する研究」

(A study on continuity of collision processes of sputtered particles in gas-solid interface on substrates rotating with super-high-speed)

審査要旨

本論文は、低圧環境におけるスパッタ粒子とアルゴン原子の衝突が成膜過程に及ぼす影響を明らかにしている。気相中の粒子と基板の境界には、緩やかに基板のポテンシャルに拘束された原子集団が存在することを示している。この状態は希薄気体中における界面の動的特性を評価する上で重要である。

第1章は、スパッタ法による成膜過程の研究の位置づけとして、原子レベルの衝突過程が影響する界面の衝突現象をとりあげることの背景について論述している。実際の装置における、基板近傍の界面現象の解明は明らかではなく、衝突の初期条件と表面状態に複雑に依存し、新しいデバイス開発では微細化・微小化が進み薄膜の膜質や膜厚を精密に制御する必要性が要求されていることを示している。

第2章は、マグネトロンスパッタリング法による薄膜成長過程の背景を論述している。半導体薄膜製造過程では、表面反応に必要な気体の流れの速さ、温度、圧力などを制御して希望する条件の膜をつくっているが、個々の装置の「個性」といわれる「流れ」等の影響は明らかにされていない。そのため、スパッタされた高エネルギーの原子、分子が基板表面で運動エネルギーを失い表面に付着し成長する過程に影響するアルゴン粒子の影響について述べている。

第3章は、実験装置と実験方法について論述し、セクターによる入射粒子数の制限に基づく衝突数頻度の影響と入射粒子の入射角度分布の影響を述べ、基板の超高速回転運動による希薄なアルゴンの流れとスパッタ粒子の作用による基板表面の原子輸送をモデル化している。

第4章は、一様な基板上的成膜と、表面に特異領域を導入した場合の成膜を行ない、基板を静止させた場合と回転させた場合の付着率の測定結果を議論している。成膜組成がセクター形状に依存することを明らかにし、特異的領域を導入により表面でスリップしながら輸送される粒子の存在を明らかにし、表面での粒子輸送に臨界速度が存在していることを示している。

第5章は、入射スパッタ粒子の一次付着率 α と二次付着率 β をモデルより計算した。スベリによる速度の不連続は、表面相の導入で解消し、気相-表面相界面の速度、および、固相-表面相界面の速度は連続になり、拡散過程を考慮し粒子の速度分布と薄膜組成の関係を理論的に明らかにし、本実験モデルの妥当性を検証している。

第6章は、結論である。アルゴン粒子の基板表面近傍における衝突過程とスパッタ粒子の付着確率の速度依存性を実験的に明らかにし、Etchingによる特異領域の導入により局所的な衝突の影響が、成膜にどのように影響しているか明らかにした。基板表面には、厚さ1nmの表面相が存在し、この領域の特性が成膜結果を支配していることを明らかにしている。

以上により、本論文が先端材料に於ける薄膜形成過程のナノレベル理解を進めていることと、応用の可能性も持っていることから審査委員会は博士(理学)の学位論文として合格と判断した。

学力確認結果の要旨

報告番号	理工論 第 号	氏 名	馬淵 正勝
審査委員	主 査	小原 幸三	
	副 査	石田 尚治	井上 政義
		寺田 教男	

平成19年2月7日に開催された学位論文の発表会での質疑応答の概要をいかに示す。

Q1：気相と固相の界面現象においてなぜ連続性を議論しなければならないのか？

A1：気相、固相における粒子の挙動はそれぞれの相の熱力学的特徴として考えなければならない。気相から固相に粒子が移動する場合、その運動エネルギーを散逸する必要があり、この過程では、粒子の速度がどのように有限の値からゼロ（重心の速度）になるのかを明らかにする必要がある。

Q2：粒子の1次付着確率と2次付着確率の意味について説明して欲しい。

A1：基板表面に付着するのはスパッタ粒子である。比較的高いエネルギーを持ったスパッタ粒子が、すでに基板表面に吸着しているアルゴンを最初の基板との衝突で排除して付着する確率を1次付着確率としている。2次付着確率は、1回目の基板との衝突で付着しなかったスパッタ粒子が、基板に平行に表面近傍を運動しているアルゴン粒子との衝突で基板に平行に輸送され、再びセクターから垂直に入射してくるアルゴン粒子との衝突により基板に付着する確率を2次付着確率と定義している。2次付着過程は、セクター内で入射してくるアルゴン原子との衝突が必要条件である。

Q3：2次の付着過程は、どのようにセクター形状に依存するのか？

A3：基板に平行輸送されているスパッタ粒子は、一部は基板に付着する確率は存在する。この結果は、基板上の組成分布に様に寄与する。本研究では、セクターの幅を小さくすると近似的に1次付着のみで近似できる。即ち、近似的にセクターの開口部以外では付着は無視するモデルである。

Q4：なぜ基板に特異領域を導入した場合に、エッチングした領域からずれた位置に組成の極大が現れるのか？

A4：基板表面が一様な場合、基板上の組成分布を測定量として用いる場合、その一様性のために半径（基板速度）依存性しか観測できない。そのために、基板上に特異領域を導入し、基板上の円周方向の特性を測定した。特異領域から脱離したスパッタ粒子は基板に平行に運動しているアルゴン原子との衝突で水平に運動し、基板とスリップして送れながら輸送される。この過程は、煙突の煙が風で横に流される現象や川底の流れをマイクロなスケールにした場合に似ている。基板上に粒子は、毎秒800回の周期的な衝突を繰り返しているので組成分布の結果は、定常状態の結果であると考えられるべきである。従って平均化されない挙動が結果として観測されることになる。

主な質疑・応答は上記の内容であった。申請者は質問に対し適切に答え、本論文の主題であるマイクロな衝突過程とマクロな測定量の関連についてほぼ理解していると判断できる。よって、審査委員会は、申請者は学位を授与するに値する知見を備えていると判断した。

申請者から、今後、科学館等で青少年の科学教育に携わり社会貢献する予定であることが示された。