

## 第3 磁極を有するマグネトロンスパッタ装置 の動作と薄膜組成制御への応用

深海龍夫\* 峯丸貴行\*\*

(昭和63年10月31日受理)

### Operation of a DC-Magnetron Sputtering System with a Third Magnetic Pole and Its Application to Control of Chemical Composition of Thin Films

Tatsuo FUKAMI Takayuki MINEMARU

A magnetron sputtering system was developed by adding a third magnetic pole of electric coil to the conventional magnetron sputtering system comprising N and S poles. The system is capable of switching over the polarity of the control pole by changing the direction of coil current, thus producing variations in magnetic field configuration so as to shift the target-eroded region. Therefore, the new system allows easy control of film composition if we use a proper composite target of coaxial disks corresponding to the magnetic field configuration and, at the same time, change the duty factor of the current flowing through the control-pole coil so as to adjust the sputtering time of each target-component. The system has proved to be useful for composition control of complex oxide films as a result of treatments on lead titanates and superconducting oxides of yttrium family.

#### 1. ま え が き

電子デバイスの小型化, 集積化にともない, 数多くの高性能薄膜デバイスが提案, 開発されている。これらの薄膜デバイスのほとんどは2種類以上の元素からなる化合物である。このため, 単純な構造の膜形成装置の開発が望まれている。また, 今後の材料の開発のありかたとして, 既存の材料の特性を利用するだけでなく, 求める特性を持つような材料の設計, 合成といった「材料設計」<sup>1)</sup>の方向に進みつつあり, この立場からも基板上で任意の組成の膜を形成できる装置が有効である。

薄膜形成法のうち, 一般によく用いられるのがスパッタ法である。スパッタ法には, 他の膜形成法と比べ次のような三つの利点がある。

- (1) W, Pt, Ti 等の高融点材料の薄膜化が可能。
- (2) 基板上に到達する粒子のエネルギーが高く膜の付着力が強い。
- (3) プロセスを制御するのが電磁力であるので, 熱プロセスに比べ制御性がよい。

さらに, 蒸着に比べ, 原材料と膜の組成比のずれが少ないともいわれているが<sup>2)</sup>, まだ

\* 電子工学科 助教授

\*\* 大学院修士課程 学生

そのずれは無視し得ない。そこで著者らは成分元素の金属板からなる複合ターゲットを構成し、それらのターゲット面占有率と、スパッタされた膜の組成との関係を定式化した上で、逆にターゲットの構成を調整して、所望の組成の膜の形成を試みてきた<sup>3)-5)</sup>。今回さらに、第三磁極を付加したマグネトロンスパッタ装置（以下、三磁極マグネトロンスパッタ装置と呼ぶ）を用いて、組成を時間的に制御し、より多様な構造の膜を作成することを試みた<sup>6)</sup>。本論文では、その動作と、チタン酸鉛膜、イットリウム系超伝導体膜を例として、その組成制御の様子を報告する。

## 2. 三磁極マグネトロンスパッタ装置の動作

### 2.1 装置の構造

平板マグネトロンスパッタにおいて、スパッタ領域はターゲット上にリング状に形成され<sup>7)</sup>、しかもその領域が磁束分布により変化する<sup>8)</sup>。本研究は、それを積極的に利用して、同心円板状の複合ターゲットを構成し、磁束分布を変化させることにより、スパッタされる物質を制御する機能を持つ装置の開発を目的としている。そこで著者らは、従来の平板マグネトロンスパッタ装置に、コイルで構成した第三の磁極を付加して、図1のような三磁極マグネトロンスパッタ装置を作成した。第三の磁極は、中心のN極と外縁部のS

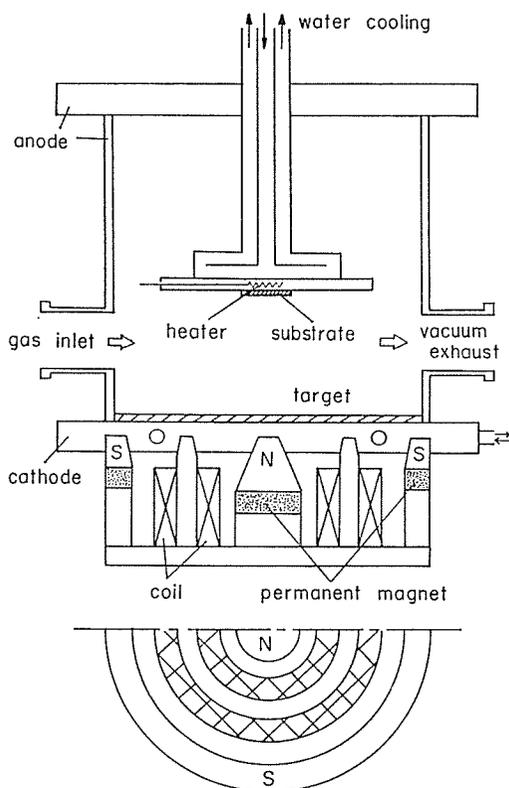


Fig. 1 Schematic drawing of the newly developed magnetron sputtering apparatus.

極の間に設置した。

### 2.2 装置の動作

スパッタされる領域はターゲット直上での垂直磁界成分がゼロとなる位置を中心にして、その近傍の臨界磁界に対応して形成されることがわかっている<sup>8)</sup>。したがって、コイルに流す電流を変化させ、垂直磁界成分の分布を変化させることで、スパッタされる領域を移動させることができる。つまり、第三の磁極（以下、制御磁極と呼ぶ。）の極性がSとなれば、垂直磁界成分がゼロの点は中心と制御磁極の間にあり、制御磁極がN極となると、垂直磁界成分がゼロの点は制御磁極と外縁部のS極の間となる。実際に、コイルに電流を流したときの磁界分布の様子を図2に示す。磁界ゼロの位置が制御磁極の内側、外側に移っていることがわかる。また、このときターゲットは、図3に示すように期待どおりそれぞれ内側、外側が侵食された。

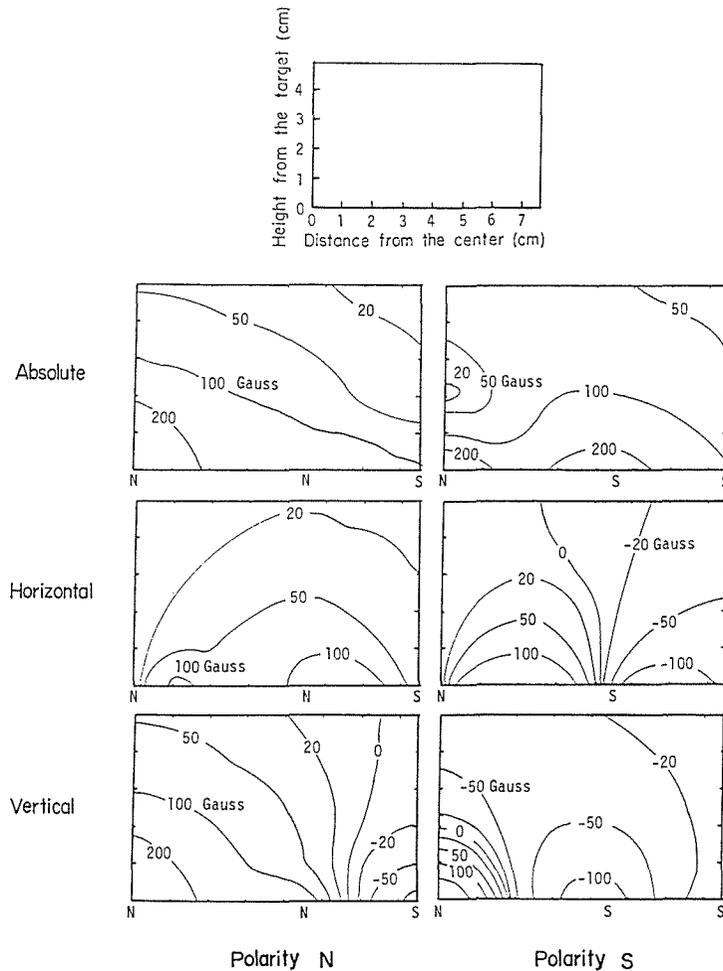


Fig. 2 Magnetic field configurations with different polarities of the control magnetic pole.

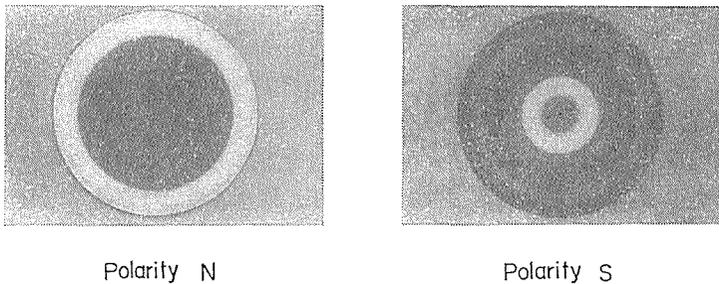


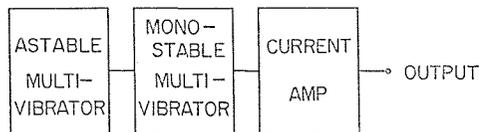
Fig. 3 Target erosion patterns with different polarities of the control magnetic pole.

### 3. 組成の制御

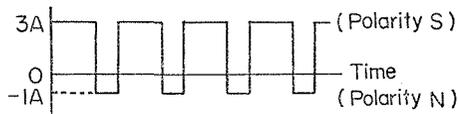
#### 3.1 組成制御の原理

前章において、制御磁極の極性を切り替えることで侵食領域を移動できることを示した。

そこで、半径の異なる二枚の円板を組み合わせた複合ターゲットを構成した。一枚は半径を中心から外縁までの大円板 ( $r=75\text{mm}$ ) とし、もう一枚は中心から制御磁極までの小円板 ( $r=45\text{mm}$ ) とする。このとき、侵食領域が制御磁極の内側ならば小円板が、外側ならば大円板が侵食される。つまり、制御磁極に流す電流の向きにより、侵食される物質が切り替えられる。ここで、流す電流を図 4 (b) のような方形波とすれば、その正の時間と



(a) Exciting power source



(b) Coil current

Fig. 4 Block diagram and wave form of the output current for exciting the power source.

負の時間でそれぞれ異なる物質が基板上に到達することになる。よって、電流一サイクル中の正と負の時間比に比例して膜の組成比が変化すると考えられる。

駆動電源の構成を図 4 (a) に示す。制御磁極が大きな誘導性負荷となるコイルで構成されているため、電流の切り替えには逆起電力が生じる。そこで、駆動電源に対する影響を緩和するために、切り替えには  $50\text{ms}$  の時間をかけるようにした。このことは一サイクル長が秒単位のため、組成制御機能にはほとんど影響しない。

#### 3.2 チタン酸鉛膜の組成制御

大円板ターゲットを鉛、小円板ターゲットをチタンとした複合ターゲットを構成した。

方形波状の電流を流し、放電の光を光ファイバーで分光器に導き、 $\lambda=368\text{nm}$  の鉛の輝線スペクトルで観察した結果を図 5 に示す。鉛の侵食に応じて鉛の輝線スペクトルがパルス状に変化しているのが見られる<sup>9)</sup>。このことから侵食領域が切り替わっていることが確認される。

図 6 に励磁電流の正負の時間比を  $0:1 \sim 6:1$  の範囲で変化させたときの膜の組成の

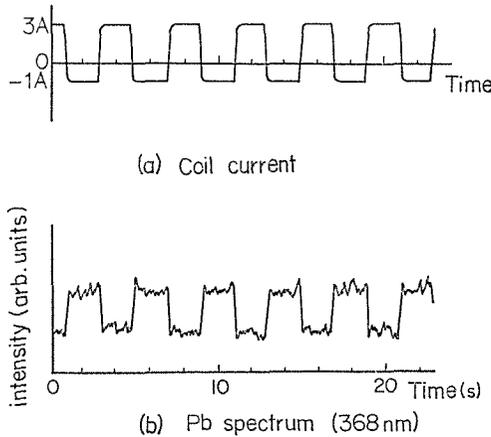


Fig. 5 Wave form of the exciting current and the corresponding time chart of the emission intensity for lead.

変化を示す。組成は、X線マイクロアナライザ (XMA) で測定した。チタン酸鉛膜の場合、基板加熱を行わない状態において、時間比に比例して膜中でのチタンと鉛の組成比が変化した。しかし、基板を550°Cに加熱して膜の堆積を行ったところ、図6に見られるように、正負の時間比が4:1まで組成比は1:1で一定となっている。これは、鉛が蒸気圧の関係で蒸発し易く、単独で堆積できずに、チタン原子と結合したときのみ、膜に取り込まれるためと考えられる。このことを利用して、著者らは、チタン酸鉛膜のエピタキシャル成長を試み、その結果はすでに報告した通りである<sup>9),10)</sup>。

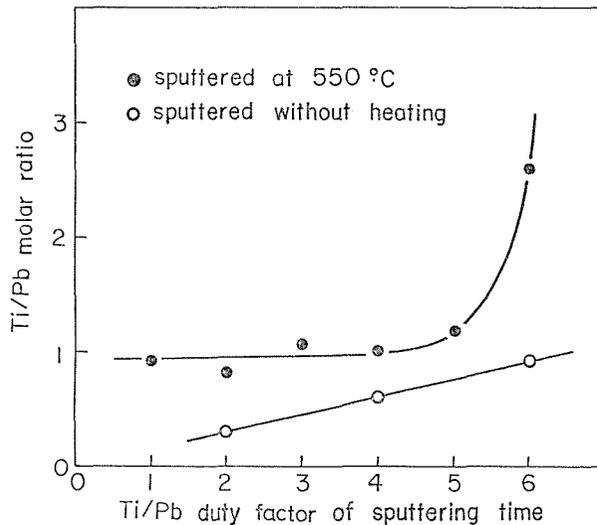


Fig. 6 Chemical composition of deposited films of lead titanate with various duty factors of exciting current.

### 3.3 イットリウム系超伝導体膜の組成制御

イットリウム系超伝導体のスパッタ法による薄膜化においては、基板温度の上昇と共にスパッタの過程での銅の減少が顕著になる。そこで、本装置により、その銅を補償し、組成の調整を試みてみた<sup>11)</sup>。

ターゲットは小円板をイットリウム系の超伝導セラミックスとし、大円板を銅とした。基板温度を350°Cとし、一サイクル長は2秒一定で、正負の時間比を変化させたときの

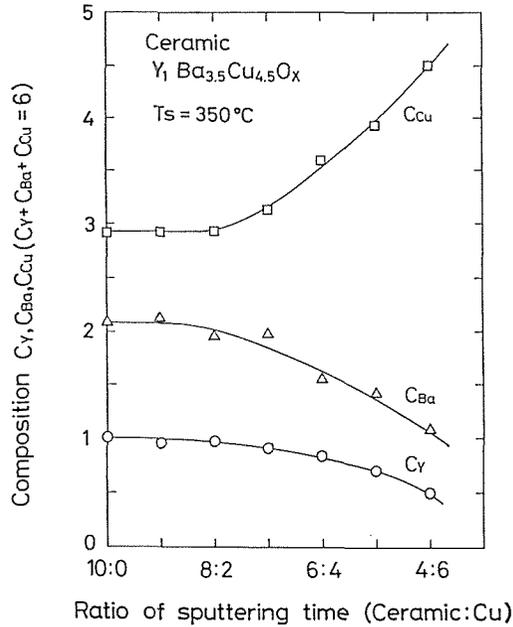


Fig. 7 Composition of superconductor films of yttrium family sputtered at various ratios of sputtering time of ceramic to copper. The values of ordinate are normalized so that the sum of each concentration is equal to 6.

膜の組成の変化を図7に示した。セラミックスのターゲットが1:3.5:4.5の組成比となっているのは、Y:Ba比を1:2とするためである。

図が示すように、時間比8:2~7:3の付近で求める組成比であるY:Ba:Cu=1:2:3が実現されている。

#### 4. ま と め

以上のように当初の目的とした機能を持つスパッタ装置を開発することができた。

この装置は、従来のターゲット面積比による組成の調整に加え、励磁電流の正負の時間比を制御して、より複雑な組成や構造の薄膜を形成しうる。今後はこの装置を新しいデバイスの作成に応用して行く予定である。

#### 参 考 文 献

- 1) 向坊 隆：材料科学の基礎I；岩波書店（1968）
- 2) 直江正彦，山中俊一：新しいスパッタ膜形成技術の動向；応用物理，48，6，pp.557-564（1979）
- 3) T. Fukami and T. Sakuma：Composition of reactively sputtered PLZT films；Jpn. J. Appl. Phys.，20，8，pp.1599-1600（1981）
- 4) 深海龍夫，直江正彦：反応性スパッタ法によるPZT膜の形成；電気学会論文誌，103，5，pp.

- 278-285 (1983)
- 5) T. Fukami, et al. : Ferroelectric films deposited by reactive sputtering and their properties ; Jpn. J. Appl. Phys., 22, Suppl. 22-2, pp.18-21 (1983)
  - 6) 深海龍夫 : 重畳磁界を用いた反応性スパッタリングについて ; アイオニクス, 8, 10, pp.1-22 昭(57-10)
  - 7) R.K. Waits : Planar magnetron sputtering ; J. Vac. Sci. & Technol., 15, 2, pp.179-187 (1978)
  - 8) T. Fukami and T. Sakuma : Target erosion pattern in planar magnetron sputtering ; Jpn. J. Appl. Phys., 21, 12, pp.1680-1683 (1982)
  - 9) 深海龍夫, 手嶋 修 : 三磁極マグネトロンスパッタ装置による酸化物薄膜の組成制御 ; 電子情報通信学会論文誌(C), J 70-C, (3), pp.408-415 (1987)
  - 10) 深海龍夫, 峯丸貴行 : 三磁極マグネトロンスパッタ装置によるチタン酸鉛膜の形成 ; 電子情報通信学会信越支部大会講演論文集, 31, (1987)
  - 11) 深海龍夫, 峯丸貴行 : 三磁極マグネトロンスパッタ装置の高温超電導体膜への応用 ; 電子情報通信学会信越支部大会講演論文集, 19, (1988)