

自由分子流域における傾斜基板のカバレジ*

木下 淳一^{*1}, 長谷 隆^{*2}

Step Coverage on Inclined Substrate in Free Molecular Flow

Junichi KINOSHITA and Takashi NAGATANI

The step coverage in the free molecular vapor deposition is investigated using Monte Carlo simulation method. The deposition growth model on the square lattice is presented to take into account the surface diffusion of deposited particles. It is shown that the surface diffusion has an important effect on the step coverage. The step coverage on the inclined substrate is also studied by the Monte Carlo simulation method. It is found that the step coverage decreases with increasing inclination. Irrespective of the inclination, the well-covered deposits is formed by increasing the surface diffusion.

Key Words: Vapor Deposition, Free Molecular Flow, Surface Diffusion, Step Coverage

1. 緒言

最近急速な高集積化を遂げている VLSI の配線等の微細な溝への成膜は非常に困難を伴う。成膜プロセスにはスパッタ成膜を始めとして様々なものがあるが、これらのプロセスを正確にモデル化し、微細な溝への成膜を高精度で予測するシミュレータの開発が必要とされてきている。従来このようなシミュレータは様々なもの^{(1) - (4)}が開発されているが、薄膜表面でのダイナミクスは膜表面を線分で近似するモデルを用いている。しかし、これでは膜の細部の形状は正確に再現することは出来ないと考えられる。また表面拡散に関しては平均拡散距離を正規分布に従うと仮定し、粒子を表面上を移動させ線分に入射する粒子に比例して膜を成長させるモデル⁽³⁾がある。しかしこのモデルでは表面状態が考慮されていない。一方、薄膜形成過程における表面粗さの研究⁽⁵⁾も活発に行われており、表面緩和を伴うモデル^{(6),(7)}や、サブモノレイヤ成長におけるクラスタの移動及び合体を考慮に入れたモデル^{(8),(9)}等が提案されている。しかし工学的な分野に応用したものはほとんどない。

そこで本研究では自由分子流域での膜成長と表面拡散を格子分子模型を使ってモデリングし、モンテカル

ロ法を用いてシミュレートする薄膜表面状態の予測を可能にするシミュレータの開発を行った。

実際の製造プロセスにおいては蒸発源に対して基板を水平にしようとしても装置の構成上基板が傾斜することが多々あり、これにより成膜形状は影響を受ける。このことから傾斜した基板に対するシミュレータの開発は工学上有用であると考えられる。しかし従来の研究では傾斜した基板への成膜をシミュレートしたものはほとんどみられない。そこで、このシミュレータを用いて膜成長に及ぼす基板傾斜角の影響を調べ、定量的なカバレジの計算を行う。

主な記号

P_B : 結合確率
 L_D : 拡散長
 R : 二乗表面平均粗さ
 θ : ステップカバレジ
 Λ : 溝のアスペクト比
 σ : 入射角度分布の標準偏差

2. シミュレーション

2.1 モデル 自由分子流域で行われる代表的な成膜プロセスとしてスパッタ成膜がある。スパッタ成膜において粒子はターゲットから放出された後、雰囲気原子と衝突を繰り返し基板に到達する。一般的にスパッタ成膜装置内の圧力は 0.01torr 以下であり、この時溝の幅を $1 \mu\text{m}$ と仮定するとクヌーセン数は約 5000

* 原稿受付 1997年5月19日。

^{*1} 学生員, 静岡大学大学院 (☎ 432-8561 浜松市城北3-5-1)。^{*2} 正員, 静岡大学工学部。

である。したがって溝周りにおいて粒子は非衝突の自由分子流として取り扱うことができる。

2.2 シミュレーション方法 図1に本研究のシミュレーションモデルを示す。粒子は計算領域に達するまでに雰囲気分子と十分衝突し熱平衡状態にあると、速度はマックスウェル分布に従うと仮定することができる。この時入射粒子の速度 $C(u, v, w)$ に対する速度分布関数 $f(C)$ は次式で与えられる。

$$f(C) = \frac{2v}{\pi C_m^3} \exp\left(-\frac{1}{C_m^2}(u^2 + v^2 + w^2)\right) \quad (1)$$

ここで u, w (m/s) は基板に平行な速度成分を、 v (m/s) は基板に垂直な速度成分を表わす。 C_m (m/s) は最大確率分子速度 ($=\sqrt{2kT/m}$)、 T (K) は上部流れ場の気体絶対温度、 m (kg) は分子の質量、 k (J/K) はボルツマン定数である。

また、速度分布関数 $f(C)$ の速度 (u, v, w) は一様乱数 $R^*(0,1)$ を用いて次のように記述される⁽¹⁰⁾。ここで一様乱数の決定のアルゴリズムは混合合同法を用いる。

$$u = C_m \sqrt{(-\ln R_1^*)} \cos(2\pi R_2^*) \quad (2)$$

$$w = C_m \sqrt{(-\ln R_1^*)} \sin(2\pi R_2^*) \quad (3)$$

$$v = -C_m \sqrt{(-\ln R_3^*)} \quad (4)$$

シミュレーションは二次元で行い、計算領域は 500×500 の正方格子、溝の幅は 120 である。粒子は計算領域の上流境界上のランダムな位置から基板に向かって1個ずつ入射させる。粒子の運動は格子上に拘束され、上下左右にのみ移動できる。入射した粒子は入射角と初期位置から決定される軌跡を格子で近似し、その格子上を移動する。粒子は上下、もしくは左右に薄膜が存在すると付着する。粒子が固体壁に到達したときに固体壁に付着する確率である付着係数は本研究ではアルミニウムスパッタ成膜を対象としている。温度が約 500 K 以下の基板上的アルミニウム原子の付着係数はほぼ 1.0 と見積もられている⁽¹¹⁾。つまり、表面に達した粒子は反射等によって気相に放出されることなく 100% 付着する。

計算領域の左右は周期的境界条件とし、境界に到着した粒子は同じ速度分布をもったまま反対側の境界へ移動する。薄膜表面に到達した粒子はその後表面拡散を行う。この表面拡散のモデルを図2に示す。ここで表面拡散の大きさを表すパラメータとして結合確率 P_B を用いた。粒子は確率 P_B で表面に停止し、 $(1 - P_B)$ で表面を移動する。粒子は左右等確率で1格子間隔移動する。ここで粒子は自分より低い位置には移動する

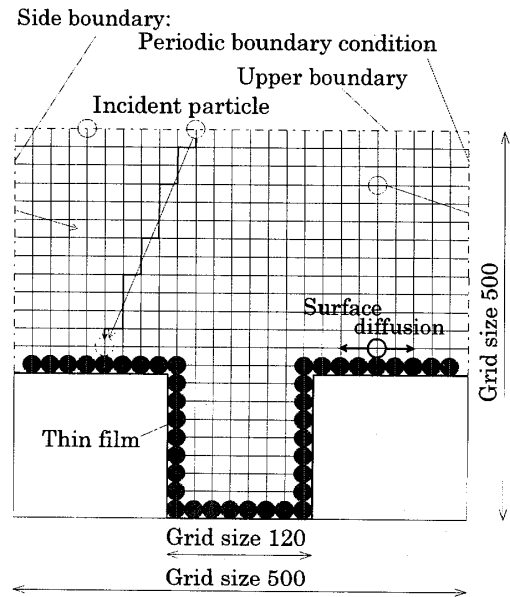


Fig.1 Simulation model

ことが出来るが、高い位置には移動できないものとする。これを粒子が停止するまで行い、停止した粒子は薄膜となる。計算は最大膜厚が溝の幅の 1/2 に達したときに終了させる。ここで表面拡散の大きさを表す指標として拡散長 L_D を用いた。粒子の初期位置と最終的に停止した位置との直線距離の平均を拡散長 L_D と定義した。

表面拡散による原子の移動は hopping rate H に依存しており⁽⁷⁾、 P_B は $(1 - H)$ に対応する。

このような膜成長のアルゴリズムを用いて自由分子流域における単一溝へのカバレジ(被膜性)の評価を行う。評価の基準としては広く用いられているステップカバレジ θ を用いる。 θ は溝側壁の最小膜厚と溝外部の平面部の最大膜厚の比である。

また、溝のアスペクト比 Λ (溝の深さ/溝の幅) の変化や、初期入射角度分布の変化がカバレジに及ぼす影響も調べる。

傾斜基板に対するシミュレーションについては入射角度分布を基板垂直方向から $0-70^\circ$ 傾けることにより実行する。

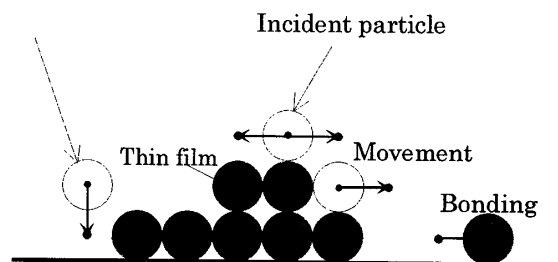


Fig.2 Surface diffusion model

3. シミュレーション結果及び考察

3.1 表面拡散 図3は本シミュレータによって計算された膜の表面である。これから結合確率 P_B の大きな場合には膜の組織は疎で膜表面は非常に粗いことがわかる。しかし結合確率 P_B の減少とともに密に、また膜表面は滑らかになっていくことがわかる。基板温度の低い、つまり表面拡散が不十分にしか作用していない条件で成膜を行うと、多孔質性の柱状組織になることが知られており、シミュレーション結果はこの現象と似ている。

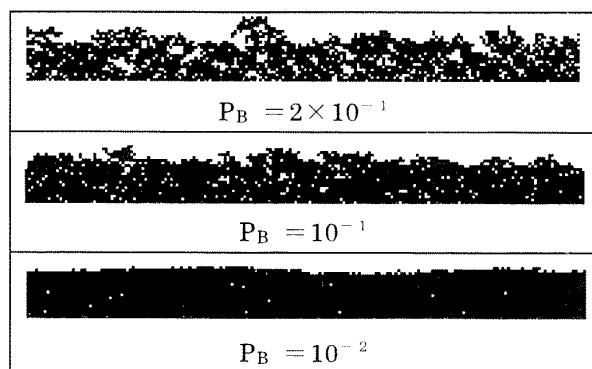


Fig.3 Simulated film surface

シミュレータによって計算された膜表面の表面粗さ R のグラフを図4に示す。グラフの横軸は P_B 、縦軸は R である。この図から表面粗さ R は P_B の増加と共にべき乗的に増加していることがわかる。したがって P_B が増加すると膜表面は急速に粗くなることを示している。

表面拡散を行った後の粒子の分布は、 P_B が減少するに従い広範囲に広がり、 L_D は増加することがわかる。凹凸のない理想的な平板上で粒子を拡散させた場合、及び任意の P_B で形成される粗面上において粒子を同一の P_B で拡散させた場合の L_D の変化を図5に示す。 L_D は粒子を 10^7 個拡散させ、平均したものである。平板上での結果は P_B が減少するに従い L_D はべき乗的に増加することがわかる。平板で $P_B = 0$ の場合に対しては本論文で用いた表面拡散モデルは基板上でブラウン粒子となり、拡散方程式の近似解を与える。図5からべき指数は -0.508 であり、ほぼ $-1/2$ に一致することがわかる。これはブラウン運動による拡散において時間を結合確率の逆数と置き換えてみると同様の結果を得ることができる。拡散長は $L_D = \sqrt{Dt}$ という関係があり、ここで $t = 1/P_B$ とすると $L_D = \sqrt{D/P_B}$ となる。この結果 L_D は P_B の $-1/2$ 乗となる。このことから本モデルの粒子は拡散方程式にしたがっていることを示し

ている。粗面上での L_D は P_B が小さい場合には平板の結果に漸近するが、 P_B が大きくなるにつれて平板の結果より小さくなる。これは P_B が大きくなると図3に示したように表面は粗くなり、この凹凸によって表面拡散が阻害されるためであると考えられる。そこで R と拡散長 L_D の関係を示したものが図6である。これから R が大きくなるにつれて L_D はべき乗的に減少していくことがわかる。したがって従来考慮されていなかった表面粗さが表面拡散に与える影響が非常に大きいことがわかった。

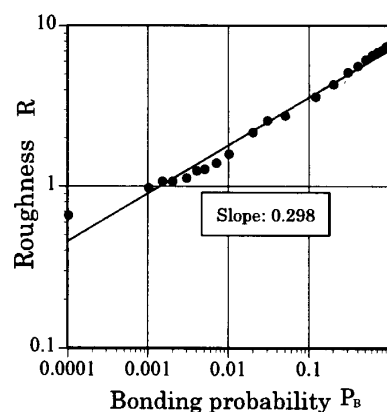


Fig.4 Roughness vs. P_B

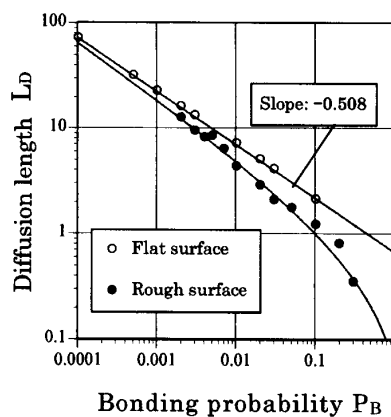


Fig.5 Diffusion length vs. P_B

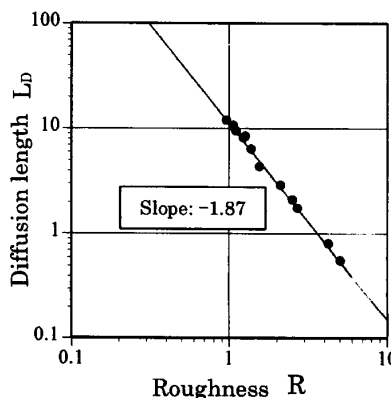


Fig.6 Diffusion length vs. Roughness.

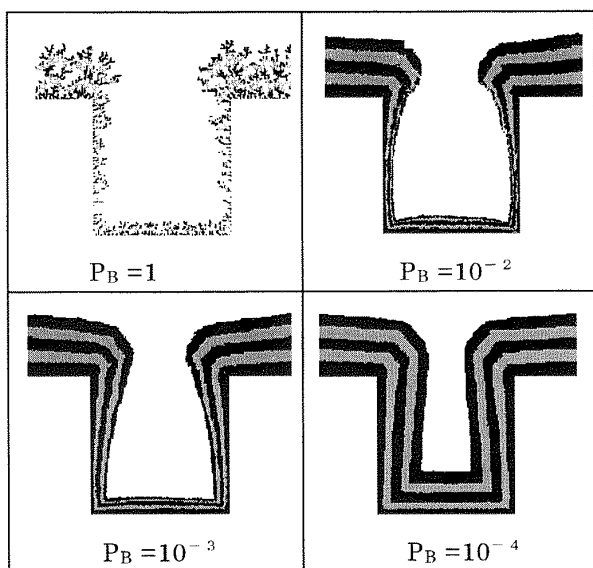


Fig.7 Simulation results (horizontal)

3.2 非傾斜基板に対するカバレジ P_B を変化した非傾斜基板に対するシミュレーション結果が図7である。ここで溝の深さは溝の幅と同じ120である。前述したように P_B が小さくなるにつれて膜組織は密になる。成膜形状は P_B が大きな場合溝外部の平面部は厚く、溝内部は薄く、溝入口はオーバーハングとなる。図5で示したように L_D は P_B の減少とともに急激に増加する。そのため P_B が非常に小さな場合 ($P_B = 10^{-4}$) では溝外部に到達した粒子も表面拡散によって溝内部に輸送されるため溝外部内部にわたって膜厚は均一となる。

ステップカバレジ θ と P_B の関係をグラフにしたものが図8である。これから P_B が小さくなるほど、また溝が浅くなる (Λ が小さい) ほど θ 大きくなることがわかる。

図9は溝のアスペクト比 Λ の変化による θ の変化を

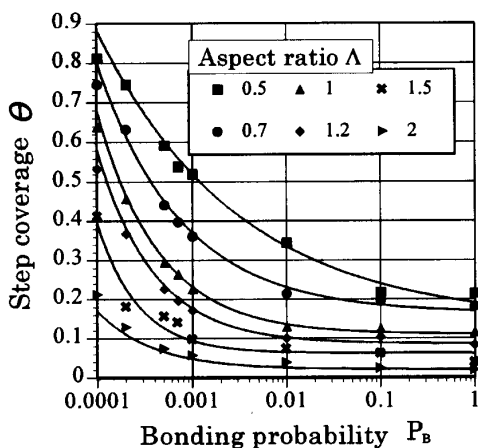


Fig.8 Step coverage vs. P_B (horizontal)

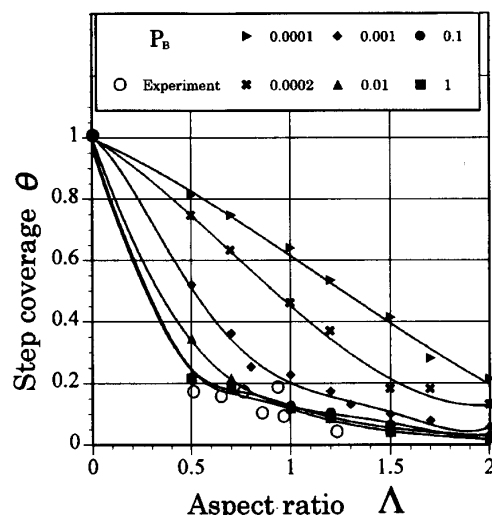


Fig.9 Step coverage vs. Aspect ratio

グラフにしたものである。○印は池川らによる実験結果^②である。これらは $P_B = 1 \sim 10^{-2}$ のシミュレーション結果とほぼ一致する。このことからこの実験は表面拡散の小さい条件下で行われたと推測することができる。

雰囲気圧力や基板の位置などの変化により粒子の入射角度分布が変化することを考慮し、粒子の初期入射角度分布を正規分布で仮定する。そして分布の標準偏差 σ をパラメータとしたシミュレーションを行った。シミュレーション結果から得た θ をグラフにしたものが図10である。グラフの横軸は σ である。グラフにおいて結合確率 P_B が1から 10^{-3} の結果ではステップカバレジは $\sigma = 0$ 、つまり粒子が基板に対してすべて垂直に入射するとき、粒子は溝の外部と溝の底に偏って到達し、溝の側壁に膜が成長しないため小さな値を取る。 σ が大きくなるにつれて粒子は散乱され溝側壁に到達することができるためステップカバレジは上昇

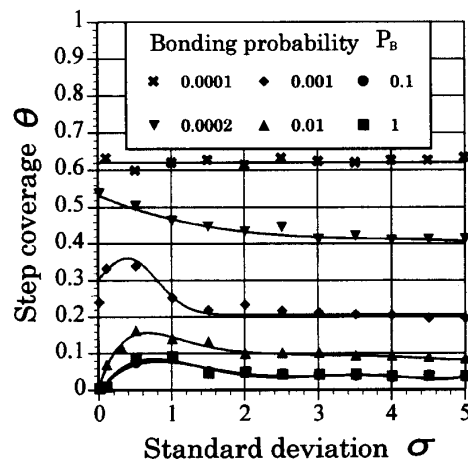


Fig.10 Effect of angle distribution(horizontal)

する。しかし粒子の散乱が大きくなり過ぎると粒子は溝入口の角部によって遮られてしまうためにステップカバレッジは逆に低下する。以上のことから P_B の大きい場合は粒子の初期入射角度分布の変化による影響は大きいことがわかる。しかし、 $P_B=10^{-4}$ の結果に注目すると θ は初期入射角度分布の変化によらず一定である。これは表面拡散による粒子の輸送が初期入射角度分布を無視できるほど大きくなっているためである。したがって表面拡散が十分に大きい条件下で成膜を行うことにより粒子の初期入射角度分布は無視できるようになる。

3.3 傾斜基板に対するカバレッジ P_B を変化させた非傾斜基板に対するシミュレーション結果が図 11 である。ここで基板の傾斜角は 30° であり、粒子は基板に対して右上から入射する。 $P_B=1, 10^{-2}$ の結果は非傾斜基板の結果と比較すると粒子の流れが基板に対して 30° 傾いているため右側壁による遮蔽効果のため右側壁に対するカバレッジは非常に悪い。逆に左側壁に対するカバレッジはよい。また溝入口の右角部のオーバーハングは小さいが、左角部のオーバーハングは非常に大きい。このように P_B が大きい場合は傾斜の影響は大きい。 $P_B=10^{-4}$ では表面拡散により粒子左側壁に到達した粒子も表面拡散によって右側壁に輸送され、粒子の付着位置が平均化されるため成膜形状は左右対称に近づく。また P_B の減少に伴う L_D の増加により溝の奥に輸送される粒子が増加する。これにより溝内部の膜が成長し、 θ は上昇する(図 12)。 Λ が小さい(溝が浅い)ほどカバレッジがよいのは非傾斜基板のときと同様の結果である。

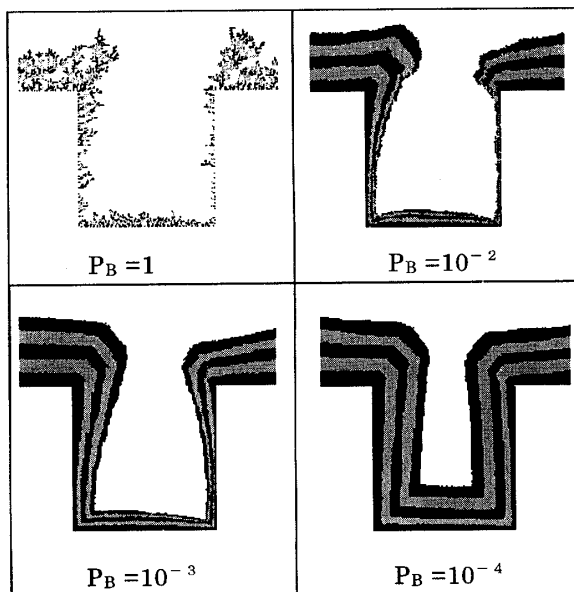


Fig.11 Simulation results(30° inclined)

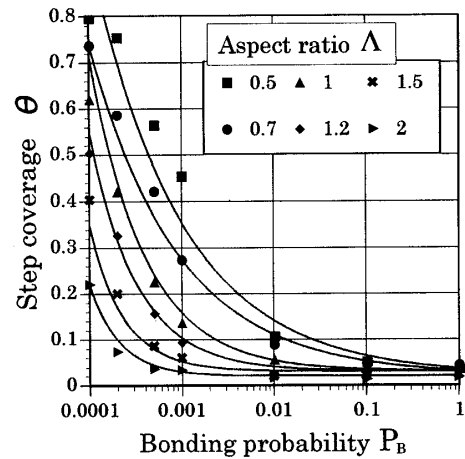


Fig.12 Step coverage vs. P_B (30° inclined)

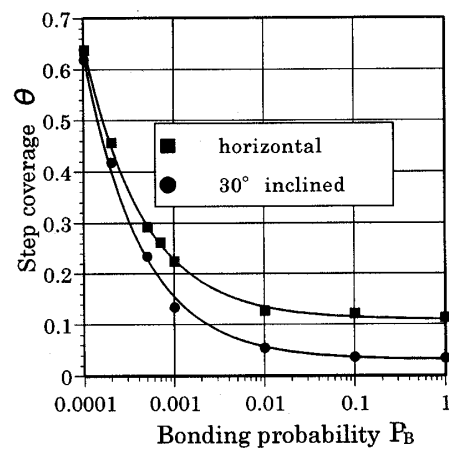


Fig.13 Comparison between horizontal and inclined substrate

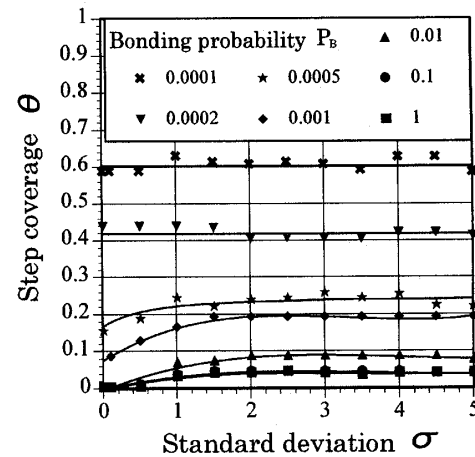


Fig.14 Effect of angle distribution(30° inclined)

図 13 は θ と P_B の関係において非傾斜基板と傾斜基板に対する結果とを比較した結果である。ここで $\Lambda=1$ 、基板傾斜角は 30° である。 P_B が大きな場合には

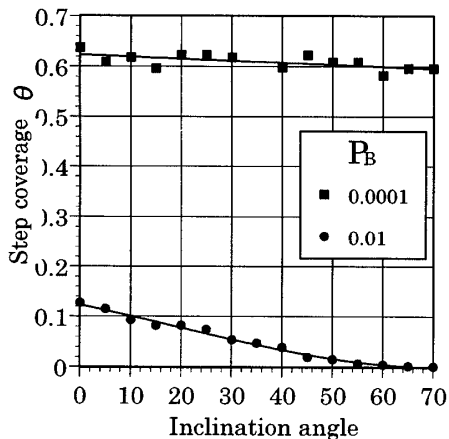


Fig.15 Effect of inclination angle

両者の差は大きいですが、 P_B の減少とともに差は縮まり、 $P_B = 10^{-4}$ に達すると差はなくなる。図 13 から表面拡散が十分に大きな場合、基板傾斜の影響が定量的になくなっていくことがわかる。

図 14 は傾斜角 30° の基板に対して初期入射角度分布を変化させた場合のステップカバレジのグラフである。グラフの横軸は初期入射角度分布の標準偏差 σ である。 P_B が大きなとき(拡散小)、 $\sigma = 0$ (無散乱)の場合入射粒子は溝の左側に偏って到達するためステップカバレジは 0 である。 σ の増加と共に粒子の散乱が大きくなり、溝の右に到達する粒子が増加するためステップカバレジは増加する。 σ が大きくなり十分に粒子が散乱されるようになるとステップカバレジは一定になる。 $P_B = 10^{-4}$ の拡散が大きな場合ではステップカバレジは分布の σ に関係なく一定である。これは表面拡散による粒子の輸送によって粒子の初期入射角度分布の変化による粒子の到達位置が無視できるためである。

基板傾斜角を変化させた場合の θ の結果を図 15 に示す。グラフの横軸は基板傾斜角であり、 $0-70^\circ$ まで変化させている。シミュレーションは $P_B = 10^{-2}$ と $P_B = 10^{-4}$ について行った。 $P_B = 10^{-2}$ の結果では、 θ は基板傾斜角 0° のときには 0.13 程度であったものが傾斜角の増加に伴い減少し、傾斜角 70° ではほぼ 0 となる。しかし、 $P_B = 10^{-4}$ の結果においては傾斜角の増加に伴わずかに θ は減少するもののほぼ一定である。このように表面拡散の大きな場合には基板傾斜角変化の影響をほとんど受けないことがわかる。

4. 結言

自由分子流域における成膜を格子分子模型を用いてモデリングし、モンテカルロシミュレーションを行い以下の結論を得た。

1. 膜成長のモデルに格子分子模型を用いることにより計算領域のセル数を大きくとることができ、膜の細部まで再現することができた。
2. 表面拡散の大きさをあらゆるパラメータとして結合確率 P_B を導入した。その結果表面拡散において拡散長 L_D に及ぼす表面粗さ R の影響をシミュレートすることができ、粗さが表面拡散に及ぼす影響が非常に大きいことがわかった。
3. 粒子の入射角度分布の変化や基板の傾斜は表面拡散の小さな領域では大きな影響を与える。しかし、表面拡散の大きな領域においては、表面拡散による膜表面の平滑化によって影響は減少する。

文献

- (1) 南部・本田, 機論, 59-557, B(1993), 93.
- (2) M. Ikegawa and J. Kobayashi, J. Electrochem. Soc., 136-10(1989), 2982.
- (3) 池川・小林, 機論, 59-567, B(1993), 3365.
- (4) 立田・他 4 名, 機論, 62-601, B(1996), 3323.
- (5) A.-L. Barabási and H.E. Stanley, Fractal Concepts in Surface Growth, Cambridge University Press, (1995).
- (6) D.E. Wolf and J. Villain, Europhys. Lett. 13(1990), 389.
- (7) S. Das Sarma and P. Tamborenea, Phys. Rev. Lett. 66, (1991), 325.
- (8) Pablo Jensen et al., Phys. Rev., B50(1994), 15316.
- (9) C. Ratsch et al., Phys. Rev. Lett., 72(1994), 3194.
- (10) G.A. Bird, "Molecular Gas Dynamics", Oxford University Press, Oxford, (1976).
- (11) "VLSI Technology", S.M. Sze, Editor, McGraw Hill International Book Company, New York (1983), 78.