

[別紙 2]

審査の結果の要旨

論文提出者氏名 中野 武雄

スパッタ堆積法によって作製される薄膜の組成・構造や厚さ分布は、基板に到達するスパッタ原子のフラックス・エネルギー・入射角などに大きく影響されるため、個々の粒子挙動を時間とともに追えるモンテカルロシミュレーション（MC シミュレーション）による現象理解の試みが 1980 年代の半ばから展開されてきている。しかし、空間での散乱過程が支配的となる数 Pa 以上の中真空領域では実験との不一致が指摘されてきた。本研究ではその原因としてこれまでガスの熱運動の効果が無視されてきたことに着眼し、MC 法に熱運動効果を導入することにより、スパッタ粒子の輸送過程を中真空スパッタ堆積過程にまで拡張することを目的としている。

本論文は 4 章および付録から構成されている。

第 1 章は序論であり、スパッタ堆積過程に関する、プラズマ、スパッタ現象、粒子輸送過程、堆積過程、に関する研究例を詳述するとともに、これまでの MC スパッタシミュレーションをレビューし、本研究の目的を明確化している。

第 2 章は粒子輸送過程の MC シミュレーションに関する基礎理論の展開、及びモデル化に関する。まず、従来モデルの基礎理論を明解に展開し、新たにスパッタ粒子と衝突する雰囲気ガスに熱運動の効果を導入するため、運動する 2 粒子間の衝突後の速度・角度分布を求める手法を定式化している。また、ガスとの衝突によって熱平衡状態に近づいたスパッタ粒子が拡散的に輸送される過程を Poisson 方程式によって記述し、壁面への到達率を計算する手法を定式化している。更に、この Poisson 方程式を境界要素法により解く方法について述べるとともに、MC 法と境界要素法とを組み合わせることにより、MC 法単独の場合に比べて計算時間を 1/10 以下に短縮しうることを明示している。

第 3 章では開発したシミュレーション結果と製膜実験結果とを比較検討しシミュレーショ

ンの妥当性・有用性を確認するとともに、これまで不明であった現象について考察を加えている。まず、10Pa の Ar ガス中でスパッタされた Cu 原子の挙動に關し、減速・拡散過程のシミュレーションにより、熱運動を考慮した場合には Cu 原子のエネルギー分布は Maxwell 分布を良く再現するが、考慮しない場合には衝突毎に Cu 原子のエネルギーが単調に減少し 0 に近づくため、ある時点で数 cm オーダの空間的な広がりを維持し運動が停止状態となることを示し、中真空スパッタ堆積におけるガス運動の重要性を示した。つぎに、スパッタ膜の膜厚分布を取り扱い、Cu のスパッタ製膜実験における回り込み現象の特異な圧力依存をシミュレーションではじめて再現した。即ち、ターゲットから飛び出した粒子が熱平衡化する位置が新たな粒子の湧き出しどとなるとし、熱平衡化位置が基板ホルダ周辺に分布する場合には基板ホルダ背面への flux が大きくなるが、更に高い圧力では熱平衡化位置がターゲット近傍に集中するためむしろホルダ背面へ到達する粒子は少なくなることを明示した。更に、六硼化ランタン (LaB_6) のスパッタ堆積における膜組成の圧力依存性について検討し、圧力が数 Pa 程度の領域において B 組成が極小となる圧力が存在する理由として、熱平衡に至らない低圧側においては B は La に比べ後方散乱する傾向が大きいが、高圧側では熱平衡化後の拡散運動が支配的となり質量の違いが輸送過程に影響しにくくなるためであるとし、回り込み現象の場合と同様、熱平衡化前の初期運動量を保った状態での輸送過程と、熱平衡化後の拡散的な輸送過程との競合によって極小が生じるとしている。最後に、スパッタ原子のプラズマ中の原子密度を MC シミュレーションによって評価する方法を提案している。これは本論文で開発された手法により、スパッタ原子の運動を長時間追うことが可能となつたために実現したものであり、発光分光計測における発光強度の原子密度依存を定量的に説明することができたとしている。

第 4 章では以上をまとめ本論文内容を総括している。

なお、付録では、定式化のアルゴリズム、サブルーチンライブラリー、プログラムの構造、原子パラメータ等がまとめられている。

以上、要するに本論文は中真空領域でのスパッタ堆積過程を記述しうるシミュレーション法を開発したものであり、実験結果と対応させモデル化の妥当性を詳細に検討したものである。中真空領域でのスパッタ堆積に対するこのような信頼性の高いシミュレーション法の提示は、今後の薄膜作製プロセスの新たな発展に大きく寄与するものと考える。

よって本論文は博士（工学）の学位請求論文として合格と認められる。