232

分子動力学法によるスパッタアルミニウム

薄膜の構造解析

京大エネルギー科学研究科

学〇飯塚高志, 正 星出敏彦

1. はじめに

一般に物理的蒸着法による薄膜の形成過程では 3 次元的成長様式をとる.また,エピタキシャル成長 のような場合には層状の成長形態となる⁽¹⁾.

分子動力学法を用いたこのような研究は盛んに行われている.以前は Morse ポテンシャルなどを用いた研究が中心であったが,表面解析への応用の困難さが指摘されている.最近では表面解析などの研究において EAM(Embedded atom method)ポテンシャルを用いたものが成果を挙げている.

本研究においては Morse および EAM ポテンシャ ルを用いて,単結晶アルミニウム基板に形成される スパッタアルミニウム薄膜の構造とスパッタ原子の 持つ入射エネルギーの関係を分子動力学法を用いて 解析した.

2. 解析モデル

2.1原子間ポテンシャル

Morse および EAM ポテンシャルによる系の全エ ネルギーはそれぞれ次の式(1), (2)で表される.

$$E_{\text{tot}} = \frac{1}{2} \sum_{i \neq j} \{ De^{-2\alpha(r_{ij} - r_0)} - 2De^{-\alpha(r_{ij} - r_0)} \} (1)$$

$$E_{\text{tot}} = \sum_{i} F(\rho_i) + \frac{1}{2} \sum_{i \neq j} \phi_{ij}(r_{ij})$$
(2)

本研究において、アルミニウムに関するポテンシ ャル関数およびパラメータはそれぞれ Girifalco ら⁽²⁾ および Mei ら⁽³⁾の導出したものを用いた.

2.2薄膜形成モデル

薄膜形成過程のモデル図を Fig.1 に示す. 基板は



Fig. 1. Deposit process Model.

1 層あたり 12×14 の 168 個の原子を持つ fcc (1,1,1) 面の9 つの層から成り,表面と垂直な方向 (x_3 ,方向) 以外の2 方向 (x_1 , x_2 方向) に周期境界条件を課す. 最下層は固定層,その上の2 層を温度制御層とし, 残りの6 層が実質的に基板を表現する.基板温度を 制御するために温度制御層の原子に速度スケーリン グを行う.

スパッタ原子は基板部の上方 100Åの位置から所 定のエネルギーを持つように速度を与え,基板部に 斜入射させた.そのときの堆積過程および形成薄膜 の構造を調べた.

2. 3 解析条件

本解析においては, 1 ステップを 2fs とし, 対象 の原子はすべてアルミニウムとした.

解析パラメータとして,原子の入射エネルギーを 0.1,1.0,2.0 および 5.0eV の4 レベルに設定し,各 解析において一定とした.入射エネルギー 0.1eV は 真空蒸着法の場合に相当し,それ以外はスパッタリ ング法における低エネルギー原子に相当する.

薄膜の形成は全部で 800 個の原子を 500 ステップ ごとに入射して行う.系を平衡状態にするために 10000 ステップの緩和計算を行った後,300 ステッ プの間に原子の平均位置を計算し,その状態を最終 形状とした.薄膜の構造を評価するために,その間 の動径分布関数および平均体積弾性率を調べた.

基板の設定温度は 300K とした. 基板の初期状態 としては,基板原子の初期速度を 300K になるよう にボルツマン分布によって与え,その後 5000 ステ ップ緩和計算を行ったものを用いた.

3. 解析結果および考察

薄膜形成過程中の基板の平均温度について入射エネルギーによる違いを Fig.2に示す. Morse ポテン





シャルに関しては基板はほぼ 300K に保たれている が, EAM ポテンシャルを用いた場合は入射エネル ギーが大きくなるにつれて基板の平均温度も上昇し ている. これは EAM ポテンシャルを用いると,原 子位置の緩和に時間がかかるためで,原子の入射間 隔を大きくすることで解消できる.

薄膜の成長過程については両ポテンシャルを用い た場合も低エネルギーでは Volmer-Weber 型の島状 3 次元成長であり,入射エネルギーが大きくなるにつ れて layer-by-layer の層状の成長形態に近付くことが 観察された.これは入射エネルギーが大きくなると 原子の易動度が大きくなるためであると考えられる. 特に EAM ポテンシャルを用いた場合はその傾向が 顕著で,最終的な形成膜はほぼ結晶構造になること がわかった.一方で Morse ポテンシャルを用いた場 合は,2.0eV の入射でも島状成長の傾向が強く,形 成膜は島状部分が大きく残る構造になった.

薄膜内の原子の x, 方向の分布を Fig.3 に示す. こ こから,形成された薄膜はおよそ 5 層からなるのが わかる.また,EAM ポテンシャルを用いた場合, 形成薄膜の各層は基板表面に平行になっているが, Morse ポテンシャルを用いた場合,原子は x, 方向に 広く分布し,構造の乱れが生じているのがわかる.

膜の構造をより詳しく調べるために薄膜の動径分 布関数を Fig.4 に示す. EAM ポテンシャルを用いた 場合, 0.1eV を除いては結晶構造になっているのが わかる. 0.1eV の入射でのみ入射原子の易動度が小 さいために生じる島状構造の影響が大きいといえる. これに対して Morse ポテンシャルを用いた場合は 1.0eV の入射においても形成膜は島状のアモルファ ス構造になっていることが確認できた. 2.0eV の入 射では原子の易動度の増加に伴い,結晶構造に近付 いているのがわかる.

形成膜の体積弾性率の入射エネルギーに対する変 化を Fig.5 に示す. EAM ポテンシャルに関しては 0.1eV においてやや低下するが, 1.0eV 以上ではほ ぼ一定の値となっている. 0.1eV 入射における低下 傾向は膜構造が結晶構造からずれることによる. ま た,いずれの場合も実験値(72.2GPa) に近い値を 示した. 一方, Morse ポテンシャルを用いた場合は いずれも実験値に比べると小さくなり十分に評価で きないことがわかる. これは構造の乱れ以外に表面 における空隙の影響が生じているためである.

以上のことから EAM ポテンシャルを用いるとス パッタリング法を用いた場合に相当する入射エネル ギー領域ではアルミニウム単結晶基板上に結晶性の アルミニウム薄膜が成長し,入射エネルギーが小さ い真空蒸着法に対しては島状部が残った構造になる という結果を得た.

一方、モースポテンシャルを用いた場合において

も入射エネルギーが大きい場合は結晶性の薄膜を形 成するという結果が得られた.

参考文献

1. 吉田貞史,薄膜,培風館, 1990.

2. L.A.Girifalco, V.G.Weizer, Phys.Rev., 114, 687, 1959.

3. J.Mei, J.W.Davenport, Phys.Rev.B, 46, 21, 1992.



Fig.3. Distribution of atoms in x_3 direction.



Fig.5. Variation of bulk modulus for incident energy.

-242-