

氏名	いいづか たかし 飯塚高志
学位(専攻分野)	博士 (エネルギー科学)
学位記番号	エネ博第23号
学位授与の日付	平成12年11月24日
学位授与の要件	学位規則第4条第1項該当
研究科・専攻	エネルギー科学研究科 エネルギー変換科学専攻
学位論文題目	スパッタリング薄膜の構造・機械的特性に関する分子動力学解析

論文調査委員 (主査) 教授 松本英治 教授 井上達雄 助教授 星出敏彦

### 論文内容の要旨

本論文は、スパッタリング薄膜を対象にして、薄膜の形成過程における基本的現象および形成した薄膜の構造的および機械的特性の関する分子動力学解析について論じた成果をまとめたもので、7章からなっている。

第1章は序論であり、薄膜被覆材料の研究の歴史と意義について述べた。さらに、スパッタリング法、薄膜の成長様式および形成条件の相違による形成膜構造の変化について概説した後、本研究の目的と構成について述べた。

第2章では、本研究に適用する分子動力学法について説明している。特に、ポテンシャルに関してはAlを対象に用いられるモースポテンシャル、EAMポテンシャルおよびEMTポテンシャルについて概説し、それらについて考察を行った。MEAMポテンシャルに対する密度依存型のカットオフ関数を用いたSi-Al系のポテンシャルパラメータのフィッティングについて述べた。さらに、本研究において用いる解析手法および構造評価法を述べた後に、薄膜形成過程、硬度および引張強度の評価に用いるモデル化について論じた。

第3章では、スパッタリング薄膜の形成において最も単純な系である単元系の代表としてAl基板上にスパッタしたAl薄膜の構造および機械的特性について論じた。まず、薄膜形成過程のシミュレーションを行い、形成条件と薄膜構造の関係を調べた。単元系における薄膜は基本的に基板の結晶構造を保ったまま形成され、このときfcc構造になることがわかった。このような薄膜の形態に関しては、主に表面気孔率によって特性化され、高基板温度および高入射エネルギーの場合において表面気孔率が小さくなることを示した。表面気孔率の減少によって、薄膜の硬度特性が増加する傾向が認められた。また、水平方向の引張負荷に対しても、破壊の基点である表面気孔の減少によって強度が増大することが判明した。

第4章では、異種界面をもつ被覆材の最も単純な系としてSi基板上的Al単結晶薄膜のモデルを用いて、薄膜内部の気孔特性と機械的性質の基本的関係を明らかにした。まず、気孔の増加による構造の変化に起因して、薄膜の充填率は低下し、一方表面気孔率は気孔が大きくなるとともに増大することがわかった。薄膜の構造的な密度を表す充填率が増加すると硬度は増加する。薄膜の内部および表面の気孔が破壊起点となるため、薄膜の水平方向への引張強度は充填率の減少に伴って低下した。薄膜の表面気孔率に対しては主に表面近傍の気孔が支配的であるが、気孔が大きくなると内部の気孔が硬度特性に与える影響も無視できないことが明らかになった。なお、気孔が表面近くに分布しているほど水平方向の引張強度が低下することがわかった。

第5章では、Si基板上的スパッタリングAl薄膜形成過程のシミュレーションを行い、前章で得られた知見に基づいて形成条件と薄膜の構造および機械的特性の関係を調べた。薄膜の形成過程において入射エネルギーが大きいほど表面気孔率は小さくなった。本解析において形成された薄膜はアモルファス構造となった。基板温度が低い場合、残留応力は入射エネルギーの増加とともに引張側から圧縮側への移行した。充填率は高入射エネルギーに対して高くなり、表面気孔率は減少した。また、低入射エネルギーの場合には充填率は低くなるが、基板温度を上げることによって増大した。薄膜の硬度は、入射エネルギーを増加すると、充填率が高くなることによって増大した。水平方向の引張強度は、基板温度を上昇し、入射エネルギー

ギーを増加することによって高くなった。入射エネルギーを増加すると、破壊起点となる気孔が減少するため引張強度が向上することがわかった。一方、基板温度を上昇すると、厚い混合層が形成され、それによって引張強度が向上することが明らかになった。鉛直方向の引張負荷においては、薄膜自体の強度と基板-薄膜界面との強度の競合により破壊形態が変化した。すなわち、薄膜内部の充填率がある値以上になると薄膜が十分な強度を有するようになるため、破壊は界面から生じることが判明した。

第6章では、実験事実および前章までの結果を参考に、より複雑な系であるセラミックス・アモルファス薄膜を対象を限定し、スパッタリング薄膜の形成条件と硬度に関して簡単な剛体球モデルによる解析を行った。この場合、射影効果が顕著になるため、形成された薄膜は柱状構造を持つアモルファス薄膜となった。入射エネルギーの増加によって薄膜の密度の増加傾向が認められた。さらに、本解析モデルを用いることによって、実験的に観察されている高周波電源出力に対する膜硬度の依存性を定性的に説明できることを示した。

第7章においては、本研究において得られた成果を要約し、今後の展望について述べている。

### 論文審査の結果の要旨

本論文は、電子材料等において重要な役割を担っているスパッタリング薄膜を対象に、その基本的現象ならびにスパッタリング薄膜の構造と機械的特性の関係について、薄膜特性に強く影響するスパッタリング過程をも含めて、分子動力学法により解析した結果をまとめたものである。得られた主な成果は以下のとおりである。

1. まず、スパッタリング過程を分子動力学法により解析する上で必要不可欠となる Si-Al 系のポテンシャルパラメータを、本論文において新たに提示した。
2. Al 単元系においては、基本的に基板の結晶構造を保ったまま薄膜が形成され、かつこのときの薄膜形態の特徴は主に表面気孔率によって決定されることを解明した。また、薄膜の硬度特性および引張強度に対しても表面気孔率が支配的であることを明らかにし、実験的に予測される傾向が認められた。
3. Si 基板上の単結晶 Al 薄膜においては、薄膜の構造的な密度を表す充填率が大きくなると、薄膜の硬度および引張強度は増大し、実験結果と定性的に対応する結果が得られた。また、これまで必ずしも明確にされていなかった、内部気孔の硬度特性に及ぼす影響、ならびに薄膜内部における気孔の位置と強度特性との関係が、本解析により初めて明らかになった。
4. Si 基板上のスパッタリング Al 薄膜の形成条件と薄膜の構造および機械的特性の関係を調べた結果、以下のことが判明した。まず、実験的に計測が困難な薄膜に生じる残留応力については、薄膜形成条件のうち基板温度と入射エネルギーに影響を受けることが、本解析により明らかにされた。また、上述の結晶膜の場合と同様に、薄膜構造の支配的パラメータとなる充填率は入射エネルギーに依存し、さらにスパッタリング薄膜の硬度は充填率によって評価できることがわかった。特に、薄膜と基板を引き離す方向の引張負荷における破壊形態は、薄膜自体の強度と基板-薄膜界面の強度との競合によって変化するということが、本解析により新たな知見として得られた。
5. 最後に、より複雑な系であるセラミックス・アモルファス薄膜の形成条件と機械的特性について、剛体球モデルに基づいた簡便なモデルによる解析を行った。この解析により、薄膜の硬度に関しては解析結果と実験結果が定性的に一致することを明らかにした。本解析モデルのように比較的簡便なモデルでも、セラミックス・アモルファス薄膜における機械的特性の定性的評価には有効であることを示し、この分野の研究における効率的な解析に向けて有用な結果を得た。

以上の研究は、スパッタリング薄膜の形成条件と構造特性の関係およびそれらの機械的特性との関係を分子動力学解析によって解明し、これにより実際の薄膜素子等の安全性および耐久性の向上に対して基礎的指針を与えており、学術上、実用上寄与するところが少なくない。よって、本論文は博士（エネルギー科学）の学位論文として価値あるものと認める。また、平成12年10月5日実施した論文内容とそれに関連した試問の結果、合格と認めた。