

サーファクタントを用いた 貴金属スパッタ薄膜の構造制御

課題番号 15560268

平成15年度～平成16年度科学研究費補助金
(基盤研究(C)(2)) 研究成果報告書

平成17年3月



00008669768

研究代表者 阿部良夫

(北見工業大学・工学部・助教授)

北見工業大学

549	北見工大庁	7
A12		

目次

第1章	はじめに	1
第2章	Ru 薄膜の配向性及び表面形態に対する O_2 ガス 添加効果	6
第3章	Ta ₂ O ₅ 膜の堆積による Ru 薄膜の酸化と 形態変化	15
第4章	まとめ	26

00008669768

北見工業大学

第1章

はじめに

研究の背景と目的

貴金属は、資源量が少なく高価であるため使用量は少ないが、その優れた物理・化学的な性質から電子デバイス用の材料として欠くことができない。例えば、現在コンピュータのメインメモリとして使われている DRAM (Dynamic Random Access Memory) や高速で不揮発性という特徴を持ち、次世代の半導体メモリとして期待されている強誘電体メモリ (Ferroelectric RAM: FeRAM) では、キャパシタの電極材料として、Pt、Ir、Ru、あるいは導電性の酸化物である IrO₂、RuO₂ などが検討されている。また、厚さ数原子層程度と非常に薄い貴金属の非磁性膜を磁性膜で挟んだスピバルブ膜は、大きな磁気抵抗効果を示すことから、高密度磁気記録デバイスの読みとりヘッドとして開発が進められている。これらの貴金属膜では、平滑な表面形態、極薄膜領域での結晶性や膜厚の均一性など微細構造の制御が非常に重要である。

このような電子デバイス用の高品質な貴金属薄膜を作製する方法として、我々は、サーファクタント (表面活性剤) 効果に注目した。例えば、Si 基板上の Ge 薄膜の成長では、薄膜表面に H、Sb、Bi などが吸着すると、薄膜の表面エネルギーの低下と原子の表面マイグレーションの減少により、3次元的な島状成長が抑制され、層状成長することが知られている。貴金属薄膜の場合も、適当なサーファクタントを利用することで、薄膜成長過程と微細構造を制御し、配向性や表面平坦性の優れた高品質な薄膜を作製できるものと期待される。我々はすでに、スパッタリングガスに微量の酸素ガスを添加すると、スパッタ Ru 膜の c 軸配向性及び表面平坦性が著しく改善されることを見いだしており、貴金属薄膜の作製においても、サーファクタントが有効ではないかと期待している。さらに、Ru 膜の最密面である c 面が優先配向することによる、物理・化学的な特性の改善も期待される。

そこで本研究では、1) 膜厚 10nm 程度の極薄膜状態における構造と表面形態を詳細に検討し、薄膜成長過程に対するサーファクタント効果を明らかにすること、2) 結晶配向性や表面平坦性の改善が貴金属膜の抵抗率や耐酸化性などの物性に与える影響を明らかにすることを目的とした。貴金属薄膜としては、FeRAM のキャパシタ電極やスピバルブ膜として検討が進められている Ru 薄膜を RF マグネトロンスパッタリング装置を用いて作製した。スパッタリング法による金属薄膜の作製の際は、通常アルゴンガスを使用するが、酸素のサーフ

アクタント効果を確認するため、数%の酸素を添加したアルゴン+酸素混合ガスをスパッタリングガスとして用いた。薄膜試料の結晶構造と表面形態は、X線回折装置(XRD)、走査型電子顕微鏡(SEM)、原子間力顕微鏡(AFM)を用いて評価した。また、物性の評価として抵抗率を四探針法で測定した。また、DRAMやFeRAMのキャパシタ電極として応用する際に重要となる耐酸化性の評価のため、 Ta_2O_5 /Ru積層膜を作製し、上部 Ta_2O_5 膜作製時の基板温度が下部Ru膜の結晶性や表面形態に与える影響を検討した。

本報告書では、まず第2章でスパッタリングガスに酸素ガスを添加することによるc軸単配向Ru薄膜の結晶性と表面形態の変化の検討結果を述べる。次に第3章では Ta_2O_5 膜の作製がRu電極の結晶性や表面形態に与える影響について検討した結果を述べる。最後に第4章に本研究の主要な成果をまとめる。

研究組織

研究代表者：阿部 良夫 (北見工業大学・工学部・助教授)

研究分担者：佐々木 克孝 (北見工業大学・工学部・教授)

研究分担者：川村 みどり (北見工業大学・工学部・助教授)

研究経費

平成 15 年度 1,800 千円

平成 16 年度 1,100 千円

計 2,900 千円

研究発表

(1) 学会誌等

1. Y. Abe, S. Shinkai, K. Sasaki, J. Yan and K. Maekawa: "Improvement of the Crystal Orientation and Surface Roughness of Ru Thin Films by Introducing Oxygen during Sputtering", Japanese Journal of Applied Physics, Vol. 43, No. 1, pp. 277-280 (2004)
2. Y. Abe, M. Kawamura and K. Sasaki: "Oxidation and Morphology Change of Ru Films Caused by Sputter Deposition of Ta₂O₅ Films", Japanese Journal of Applied Physics, 印刷中

(2) 国際会議プロシーディング

1. Y. Abe, S. Shinkai, K. Sasaki, J. Yan and K. Maekawa: "Improvement of the Crystal Orientation and Surface Roughness of Sputtered Ru Thin Films", Proceedings of the 7th International Symposium on Sputtering & Plasma Processes (ISSP 2003), Kanazawa, pp. 191-194 (2003)

第4章

まとめ

本研究ではDRAMやFeRAMのキャパシタ電極材料やスピバルブ膜として検討が進められているRu薄膜をRFマグネトロンスパッタ装置を用いて作製し、基板温度、堆積速度、スパッタガス (Ar+O₂混合ガス) の組成などの作製条件が、表面形態と結晶配向性に与える影響を詳細に検討した。その結果、500°C程度の高い基板温度、10nm/min程度以下の低い堆積速度、数%程度の微量な酸素ガスの添加により、表面粗さが約1nmと非常に平坦で、かつX線回折ロックングカーブの半価幅が1.2° と結晶配向性の優れたc軸単配向Ru薄膜を作製できることを明らかにした。スパッタリングガスに添加したO₂ガスはサーファクタントとしての働きによりRu結晶の最密面であるc面の表面エネルギーを下げるとともに、Ru原子の凝集を抑制して表面形態を改善すると考えられる。特に膜厚さが数nmと薄い薄膜成長初期過程において大きな効果が認められた。

次に、DRAM 電極へ適用する上で重要な課題となる Ru 膜の表面粗さに対する誘電体膜の堆積条件の影響を検討した。Ru 膜の上に誘電体膜として Ta₂O₅ 膜をスパッタリング法で基板温度を変えて作製した結果、Ta₂O₅ 膜の基板温度が 400°C 程度以下であれば、Ta₂O₅ 膜表面および Ta₂O₅/Ru 界面ともに平坦であるが、基板温度が 500°C に上昇すると表面・界面ともに急激に凹凸が激しくなることがわかった。また、この表面荒れの主な原因は、Ru 薄膜の表面が酸化され RuO₂ が形成されるためであることが明らかになり、c 軸単配向 Ru 薄膜の優れた表面平坦性を活かすためには、誘電体膜の堆積温度を 400°C 以下として Ru 膜の酸化を抑えることが必要であることがわかった。