

複合パルスレーザー蒸着法による酸化物半導体成膜 Oxide semiconductor deposition by plasma-enhanced pulsed laser deposition

伊庭野健造, 上田良夫, リ ハンテ
Kenzo Ibane, Yoshio Ueda, Heun Tae Lee

大阪大学大学院工学研究科
Graduate School of Engineering, Osaka University

高密度成膜が可能なパルスレーザー蒸着法 (PLD) [1]は、機能性材料としての酸化物半導体 (OS) 成膜に広く利用されている。しかし、PLD には薄膜の非均一性などの課題があり、背景プラズマを用いた複合 PLD[2]での解決が期待されている。そこで複合 PLD における物理過程の解明し、より高度な成膜手法の確立に向けた研究に取り組んでいる。

PLD の背景プラズマとして、ECR プラズマ装置を使用した。ECR プラズマ実験装置内において、プラズマは横方向に流れており、被成膜試料 (合成石英) は流れに対面するよう垂直に設置した。さらに PLD ターゲット (タングステン: W) を被成膜試料の前部に設置したが、このとき PLD ターゲットはプラズマ流れに対して平行に設置し、PLD によるアブレーションルーム (放出粒子) が直接試料に堆積しないように配置した。つまり、ECR プラズマがない状況では、パルスレーザー照射を実施しても試料には堆積が起らない。しかし、ECR プラズマを背景プラズマとした場合に PLD を実施すると、試料への W 堆積がみられることを確認した。さらに、試料ホルダを -60V バイアスした場合は堆積がみられるが、-20V と小さくした場合は堆積が減少することが分かった。

複合 PLD に使用するガスを不活性ガスであるヘリウムから、活性ガスである酸素に変更して実験を行ったところ、酸化タングステンの形成を示唆する黄色い薄膜の形成が確認された。この際、背景プラズマの代わりに酸素ガスを使用した単純な PLD 堆積も併せて実施したところ、金属光沢を示すタングステン薄膜が確認された。このことから複合 PLD において化学反応をさせながら堆積が可能なことが示された。ただし、反応が起っているのが気相中 (プラズマ相中) か、堆積薄膜表面かは本結果からは判断ができない。

ECR プラズマ (10^{18}m^{-3}) において中性ガス粒子とイオンの衝突平均自由行程は 0.1~1m 程度であり、寄与は小さく、背景プラズマが直接 PLD プルームを輸送するとは考えにくい。しかし、電離衝突の平均自由行程は 1~10mm 程度であり、

PLD 粒子の一部はイオン化する。試料ホルダの負バイアスにより、イオン化された PLD 粒子が加速されると、周辺の PLD 粒子と衝突し、運動量を与えて、試料ホルダ方向に PLD 粒子群を引き付けると予想された。本研究では実際にバイアスを小さくすると堆積量が減少することを確認し、事前の仮説と合致する結果が得られている。

背景プラズマによる輸送効果を確認できたことから、より複雑な複合 PLD プロセスの確立についても実施した。特に背景プラズマ源として ECR 装置に変えてマグネトロンスパッタ装置を実装し、スパッタ粒子を含んだ背景プラズマを利用可能にした装置を紹介する。マグネトロン装置からの粒子供給と PLD からの粒子供給を兼ね備え、同時に反応性プラズマを利用し、高効率に機能性 OS 薄膜を実現する手法を構築した。その際に使用するマグネトロンターゲット、PLD ターゲット、ガス種類に加えて、マグネトロンバイアス、PLD レーザーパラメータ (強度、パルス幅、デューティ比)、試料温度 (室温~1200°C) を変えた実験結果を紹介する。

[1] Lowndes, *Science*, 273(1996)898

[2] S. Rajendiran, D. Meehan, and E. Wagenaars, *AIP Advances* 10 (6) (2020) 065323