

スパッタリング製膜プロセスの研究における新展開

Recent Trends in Researches on Sputter Deposition Process

中野 武雄*

Takeo NAKANO

成蹊大学 理工学部 物質生命理工学科

Dept. of Materials and Life Science, SEIKEI Univ.

1 はじめに

低圧放電プラズマを利用したスパッタリング製膜プロセスは、現代の産業において非常に広汎に用いられている。この理由として Parsons は、スパッタ膜では蒸着膜に比べて平坦かつ緻密な膜が得やすいこと、密着性が良いこと、また実験室レベルの装置で得られた知見が、生産装置のサイズにも適用可能なことが多いこと、などを指摘している [1]。

良好な膜物性が得られる理由は、製膜途上に飛来する高エネルギー（数～数 100 eV）粒子の効果だと考えられている [2,3]。これらの高エネルギー粒子は、スパッタ製膜プロセスが低圧プラズマ放電を伴うことに由来する。ただしこのような高エネルギー粒子がどのように発生して成長中の膜表面へ飛来するかや、そもそもスパッタされた原子・分子が基板面にどのような分布で堆積するかを予測することは、それほど簡単な問題ではない。

この理由のひとつは、現在のスパッタ製膜プロセスのほとんどで、マグネトロンスパッタが用いられていることにある。ターゲット付近に磁場を配置してプラズマを閉じ込めるマグネトロン放電は、低圧での放電を可能とし、また電流密度を上昇させるので、成膜速度の高速化のために広く用いられるようになった。しかし磁場の存在する弱電離プラズマの理論モデルは取り扱いが簡単でなく、計算機の助けを借りないとシミュレーションを行うことは難しかった。

もうひとつの理由としては、放電に必要なガスが容器内部に存在している点にある。ターゲットで発生した反跳粒子（後述）やスパッタ粒子といった高エネルギーの粒子は、これらのガス原子（分子）と衝突・散乱を行うため、壁面まで輸送される過程が複雑となる。

このような理由から、従来膜厚の均一性や膜物性に対する外部パラメータ（容器形状・磁場配置・放電電力・ガス圧力など）の最適値探索は、実際に試行錯誤的に実験を行うかたちがほとんどであった。もしも基板に飛来する粒子の種類・エネルギー・角度といった、膜物性により直接関与するであろうパラメータと、これら外部パラメータとの相関についての理解が深まれば、この作業は大きく省力化できるはずである（図 1）。

本稿では、この 6 月に行われた ISSP2005 (<http://issp2005.org>) における報告を中心に、このようなスパッタリング製膜プロセスの理解を目的とした最近の研究を紹介する。上述のような理由から、膜物性そのものよりは、製膜プロセス（マグネトロンプラズマの生成や高エネルギー粒子・スパッタ粒子の輸送過程）に重点を置く。このテーマに関連して我々の行ってきた研究も、併せていくつか紹介する。

* 〒 180-8633 東京都武蔵野市吉祥寺北町 3-3-1, E-mail: nakano@st.seikei.ac.jp

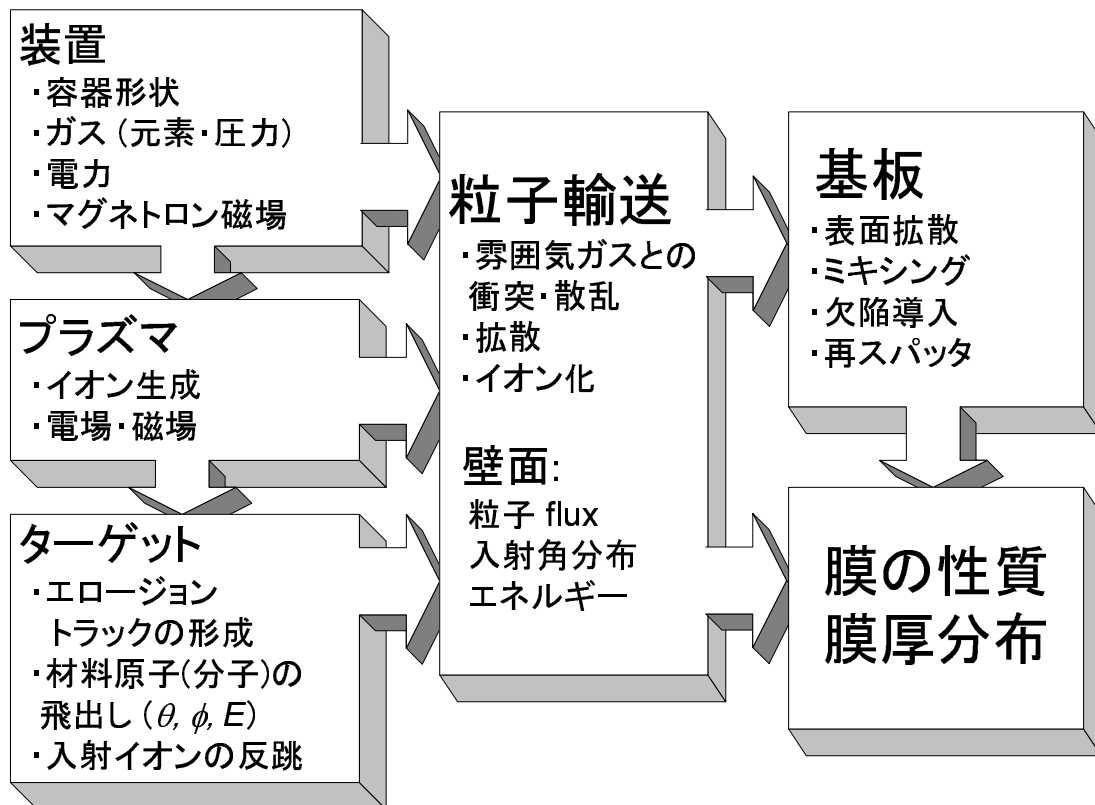


図 1: スパッタ製膜プロセスの外部・内部パラメータ

なお 90 年代以降、イオン化促進スパッタをはじめとする新手法の開発や反応性スパッタリングの適用・理解にも大きな進展があったが、一部を除いて本稿では触れない。それぞれ、第一人者である Rossmagel [4] および Berg [5] による総説が最近出ているので、そちらを参照してほしい。

2 シミュレーション

スパッタリング製膜プロセスのシミュレーションの難しさは、上述の通り、マグネトロン磁場が存在している点と、ターゲット起源の高エネルギー粒子が存在し、それが空間のガスと衝突しながら減速していく点とにある。前者は対象とする装置空間の対称性を劣化させるだけでなく、プラズマ内の荷電粒子の振舞いを複雑にする。また後者はプラズマやスパッタ粒子の流体的な取り扱いを困難とし、粒子追跡的なシミュレーションを要求する。粒子追跡はモンテカルロ法に基いて行われるため、十分な計算機資源を利用して大量の試行を行わなければ、意味のある結果が得られない。

最も初期のスパッタ製膜のシミュレーションモデルは、マグネトロンによってターゲット表面にできたエロージョントラックの深さに比例した蒸発源を想定し、スパッタ粒子は無衝突であると仮定して、基板への付着分布を積分で求めるものであった [6]。ただしこの方法は無衝突の仮定ゆえに、ターゲット - 基板間距離 (T-S 距離) よりもスパッタ粒子の平均自由行程が長くなるような低圧力領域にしか適用できない。

スパッタ粒子が容器内にある放電用のガスと衝突する過程を確率的に取り扱い、膜厚分布や飛来エネルギーをシミュレートするモンテカルロ法は、1980 年代の半ばから研究が始まった。実際に膜厚分布を予言可能であること、モデルが比較的単純であることなどから、この手法は多く利用されるようになった。このようなモンテカルロシミュレーションについての詳細は、この手法

の創始者のひとりである元廣による総説 [7] および筆者の以前の報告 [8] を参照してほしい。ただしこの手法では、スパッタ粒子の蒸発 (飛び出し) 位置の分布を、実験装置で実測したターゲットエロージョンの深さ分布から得ている場合がほとんどであり、よって先験的・自己完結的なシミュレーションとは言えない。マグネトロンスパッタにおけるエロージョンの予測手法としては、二次電子の軌跡追跡をベースに行う方法 [9] が提案されていたが、この手法も空間の電場分布を前もって仮定する必要があり、先験的なものではなかった。

一方 1990 年代の半ば以降、PIC/MC (Particle-In-Cell/Monte Carlo) 法に基くマグネトロンプラズマのシミュレーションが行われるようになってきた。この手法では、プラズマ空間をセルに分割し、各々の内部で中性粒子・イオン・電子の (弾性的・非弾性的な) 衝突過程を、モンテカルロ的に計算する。さらに、得られた荷電粒子の分布をもとに Poisson 方程式を解くことで、電場 (電位) 分布を self-consistent に得たり、高速粒子によって雰囲気ガスに与えられる熱の拡散過程を処理して温度・密度分布を得たりする工夫もなされるようになってきている。招待講演者として ISSP2005 に招かれた韓国 Pohang 大の Lee [10,11] とベルギー Antwerp 大の Bogaerts [12] のほか、東北大の南部ら (例えば [13])、Iowa 州立大¹の Kushner ら [14] などのグループが、この手法に基いたプラズマシミュレーションの結果を報告している。

Bogaerts や Lee らは、このようなシミュレーションによってターゲットエロージョンの分布を得ており、実験と良好な一致を示したとしている。エロージョン分布が装置形状と放電条件のみから再現できるようになったことは、上述のような事情を考えれば、大きな進歩と言えるであろう。

また最近 Stout らは Kushner らが開発した HPEM, PCMCS といった計算ルーチンを用いて、基板へ飛来する高エネルギー粒子がトレンチ構造のボトムカバレッジに与える影響を調べ、実験と比較して定性的な一致を見ている [15]。このとき、ターゲット電力が小さい方が、結果として基板に大きな自己バイアスをもたらし、基板に付着した膜の再スパッタを促進することが指摘されている。これは従来の単純な粒子追跡のモンテカルロモデルでは再現できなかった、PIC/MC ならではの知見と言えよう。

別の手法として、慶應大の真壁らのグループは、バルクプラズマの電子輸送を連続体的に、またシース付近の高速な電子の輸送をモンテカルロ的に取り扱い、イオン・高速粒子などはボルツマン方程式で処理したハイブリッドモデルを用いたシミュレーションを開発しており [16]、PIC/MC の場合と同様、self-consistent に電場分布やターゲット上のイオンフラックスを導出している [17]。またアンバランスマグネトロンで見られる基板付近での電子・イオン密度の向上 [1] を再現している [18]。

これらのシミュレーションでは各粒子間の衝突の素過程を非常に精密に取り扱うようになってきている。また高周波放電やパルス DC 放電のシミュレーションも原理的には可能で、例えば Kushner のグループでは (磁場のない CVD の場合ではあるが) パルス DC 放電で見られる異常に高いプラズマポテンシャル (~ 数 10 V) を再現している [19]。プラズマの挙動を理解していく上で、これらのシミュレーションは今後も強力な手段となるだろう。

ただし、プラズマシミュレーションの精密さに比べて、ターゲットから粒子が放出されるプロセスの取り扱いは、まだかなり粗い (あるいはそもそも困難である) と言わざるを得ない。スパッタされた粒子のエネルギーは、単元素ターゲットについては Thomson の式 [20] (ないしその修正モデル [21]) で比較的良く記述されるが、合金・化合物に関する適切な理論式はまだ存在しない。放出角度分布についてはさらに難しく、ターゲットの結晶構造によってさまざまとなることが実験的に示されている [22] 一方で、モデル計算では (例えば cos 分布などの) 単純な分布関数を用いてしまうことが多い。さらに、実際の製膜プロセスではエロージョントラックの生成に伴ってターゲット面には局所的な傾斜が生じるが、この点の処理をどうすべきかも簡単ではない [23]。ターゲットからのスパッタリング現象を扱ったモンテカルロシミュレーションモデルには SRIM [24] な

¹2005 年に Illinois 大から移籍。

どがあるが、スパッタ製膜プロセスで用いるような低エネルギー領域については、実験との一致が良くないとの主張がある [25]。

3 実験研究

3.1 高エネルギー粒子の評価

冒頭で述べたように、スパッタ製膜プロセス中に基板に入射する高エネルギーの粒子は薄膜の成長様式に大きく影響する。数~20 eV くらいまでのエネルギーの粒子は、表面拡散を促進することで、膜の稠密化などに効果があると考えられている。これは粒子のイオン化と基板バイアスを組み合わせたり [26]、あるいはパルススパッタによってプラズマポテンシャルを高めたり [27] することで、制御可能と考えられている。

一方で、100 eV を越えるような高いエネルギーの粒子の入射は、成長中の膜にダメージを与える。この起源のひとつとしては、陰極シースで加速されてターゲットに入射したイオンが、表面で電荷を中和されると同時に反跳し、エネルギーを保持したまま基板に向かって飛ぶ、というプロセスが提案されていた [28]。

今回の ISSP2005 で招待講演を行った名古屋大の豊田らは、ターゲットに対向する位置における Ar イオンのエネルギー分布関数を測定し、その分布関数をモンテカルロシミュレーションによって再現している [29,30]。分布のうちの高エネルギー成分は、上述のようにターゲットで反跳した高速の中性 Ar が、飛来途上でイオン化したものと考えられる。豊田らは、このイオン化の主要因が、高速の中性 Ar が雰囲気にある低速の Ar 中性原子と衝突する際に起こるイオン化であることを各種のイオン化断面積のデータより示し、この効果を取り込んだシミュレーションと実験結果との間に非常に良い一致を見ている。またこれらのイオンの起源が反跳 Ar 中性原子であることから、このイオンエネルギー測定が、高速粒子が膜へ与えるダメージの評価に適していると主張している。

高エネルギー粒子の別の起源としては、基板付近で生じた負イオンが陰極シースで逆に加速される過程も知られている [31]。ISSP2005 でも、徳島大の富永らのグループにより、ターゲットとして Ti および Zr を用い、反応性ガスとして酸素を含むスパッタ製膜環境において、高エネルギー負イオンの測定を行った報告があった [32]。

3.2 成膜速度・膜厚分布の評価

スパッタ製膜での膜厚分布は、先に述べた粒子輸送過程のモンテカルロ・シミュレーションと実験との両面から、多くの研究がなされてきた。ただし、圧力が数 Pa 以上と高く、熱中性化と呼ばれる現象が生じる領域での議論は少なかった。熱中性化とは、ターゲットからの高エネルギー粒子が雰囲気ガスと多く衝突することによって減速され、その速度がガスの熱速度と同程度になることを言う。熱中性化後は衝突の際にガスの運動を無視できなくなるため、シミュレーションが複雑になる [8]。筆者らは ISSP2005 において、この熱中性化が生じるような圧力領域において、その前後で粒子輸送過程の違いが顕著に表われることを報告した [33] ので、その概要をここで紹介する。

実験では図 2 のような 3 つの膜厚モニタを備えたステージを製作し、各モニタにおける成膜速度を調べた。“Center” のモニタは回転対称の中心軸上にあり、“Edge” および “Back” は中心軸から 28 mm 離れた位置に設置した。ステージ全体の大きさは、直径が 84 mm、厚さが 23 mm である。放電ガスにはアルゴンをを用い、電力 50 W 一定で DC 放電を行なった。アルゴンガスの圧力は 0.4~16 Pa の範囲で変化させた。ターゲットには Al, Cu, Mo 3 種類の金属を用いた。ター

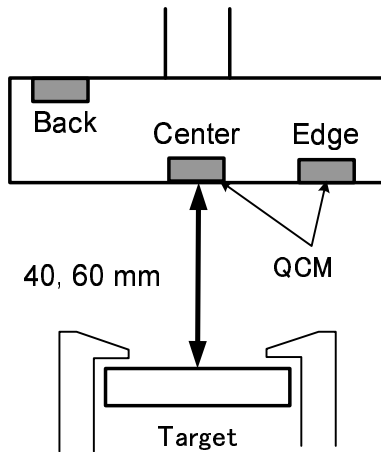


図 2: 成膜速度測定用モニタステージ

ゲットは直径 50 mm の円板で、マグネトロン磁場によって直径 20 mm ほどのエロージョントラックが生じる。

このような条件で放電を行ない、実際に成膜速度を測定した結果を図 3 に示す。図中 C, E, B は、それぞれ Center, Edge, Back の位置に対応しており、40 mm, 60 mm というのはターゲットからステージ表面までの距離を示す。縦軸の成膜速度は対数軸で与えているので、図中の縦軸方向の長さは速度比に対応していることに注意してほしい。

まず特徴的なのは、Back の位置での成膜速度が、圧力上昇とともにいったん増加し、数 Pa あたりでピークを取ってその後減少すること、そしてこのピーク位置よりも高圧力側では、表面の Center と Edge における成膜速度も減少していることである。また、この高圧力領域では、圧力上昇に連れて Edge/Center の比が徐々に小さくなっている、すなわち膜厚の均一性が劣化していることもわかる。我々のシミュレーションは、これらの傾向を良く再現した。シミュレーションによれば、この Back での成膜速度がピークを示す圧力は、ちょうど粒子の熱中性化がはじまる圧力に対応しており、ピークより低圧力側ではスパッタ粒子は弾道的に、高圧力側では拡散的に輸送されている。

このとき、Back における成膜速度のピークは次のように理解できる。弾道的な輸送下では、圧力が上昇して衝突回数が増えると、スパッタ粒子が裏面へ回り込む確率が高くなるため、圧力上昇とともに裏面での成膜速度は増加する。一方拡散的な輸送下では、スパッタ粒子は熱中性化した地点からランダムウォークを開始する。圧力上昇とともに、この位置の分布はターゲット近傍に近づく。このとき容器壁面が吸収境界として作用するので、遠方の裏面へ回り込んで届く確率が減少し、成膜速度が減少するのである。拡散が支配的となる高圧力領域で、Edge/Center 比が圧力上昇とともに小さくなるのも、同じ機構によって理解できる（このとき、蒸発源であるターゲットがステージに比べて小さいことに注意）。

スパッタ原子の質量は、衝突の際の散乱角度分布（アルゴンより軽いと後方散乱される）やエネルギー損失（質量が近いと大きい）を通して、熱中性化のしやすさに影響する。今回用いた Al, Cu, Mo については、この順に熱中性化が起こりやすいことがシミュレーションからわかっており、これは実験の結果と対応している。

高圧力領域において成膜速度が減少する原因としては、スパッタされた粒子がターゲットに再付着する現象のほか、そもそもターゲットからの放出率が小さい、スパッタ粒子同士が集合してクラスタを形成し、重力の効果が顕著となる、などが考えられるが、今のところまだ実験を完全に再現するシミュレーションモデルはできていない。また Edge/Center 比は、ターゲットからの

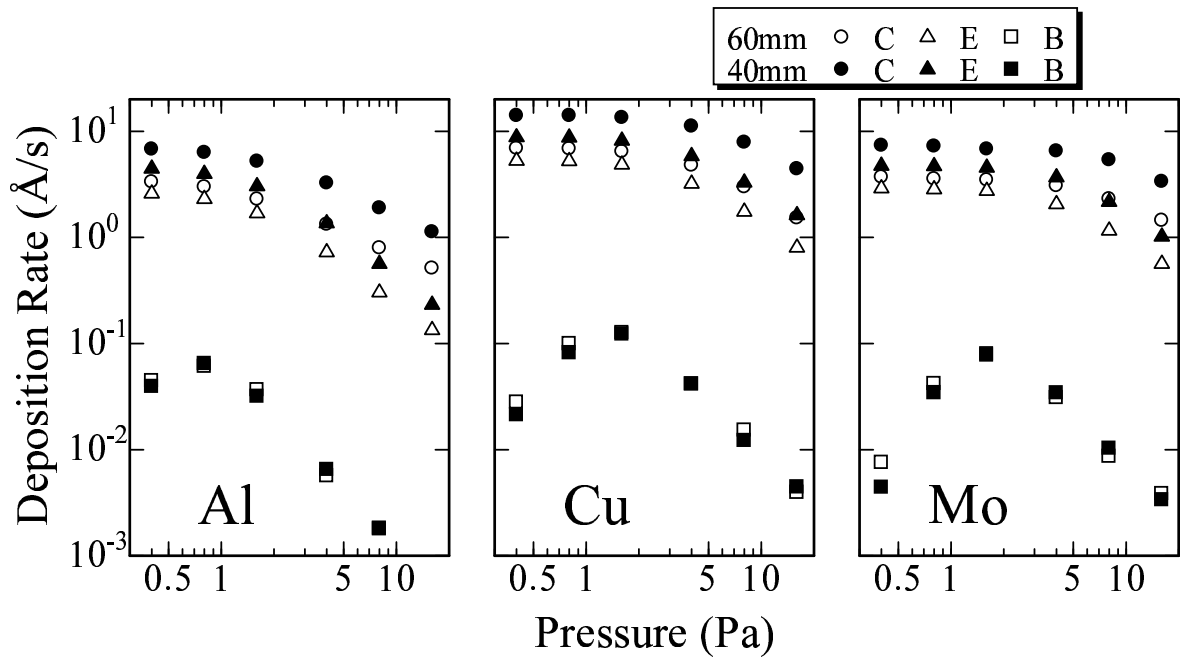


図 3: 成膜速度の圧力依存性

放出角度分布を \cos 分布と仮定した我々のシミュレーションよりも、低圧領域で 20~30% ほど大きくなり、アンダーコサインないし蝶ネジ型の放出分布であることが示唆された。

このように、ターゲットからの放出角度分布は膜厚分布を考える際に非常に重要であるが、前述のように、分布のかたちは報告や条件によってまちまちで、統一的な理解はなされていない。その意味で興味深かったのが、キヤノンの神谷・東京工芸大の星らによる ISSP2005 での報告 [34] であった。彼らは実際の製膜環境に近い実験装置を用い、ガスによる散乱の少ない低圧下 (0.27 Pa ~) で、ターゲットを中心とする円弧上に沿って膜厚モニタを移動させ、Ta および Cu ターゲットからの放出角分布を測定していた。Ta についてはほぼ \cos 分布、Cu については蝶ネジに近い分布が得られていた。さらに元素や製法の異なるターゲットについてデータが蓄積されると、装置設計者・実験者にとって有用な情報になるのではないかと。

3.3 発光・吸光分光を用いたプラズマ中の粒子密度の評価

プラズマからの発光分光測定 (OES) や、その逆過程である吸光分光測定 (OAS) は、プラズマ診断の手法として広く用いられている [35]。この手法は基本的に、プラズマ中の原子やイオンおよびそれらの励起種の密度に関する情報を与える。スパッタ粒子の密度分布は、粒子輸送過程モデルを構築・検証する上でも重要な実験データとなりうるし、またスパッタ粒子をプラズマ中でイオン化してから堆積させるプロセスでは、本質的に重要なパラメータでもある。スパッタ製膜プロセスでは膜が窓に付着する問題があるため、これらの手法の適用はやや限定的であるが、以下いくつかの研究例を紹介したい。

吸収分光は本質的に密度の定量測定が可能で、フランス Paul Sabatier 大の Ricard およびベルギー Mons-Hainaut 大 Hecq らからなるグループ (最近の報告としては [36, 37]) のほか、国内でも東海大の沖村らによる Ti プラズマ中の原子・イオン密度に関する一連の研究がある [38, 39]。これらの研究では、RF 支援を用いたプラズマ加熱に関連して、イオン化の状況を議論するために用いられている場合が多いようである。

一方発光分光測定では、発光線の強度は励起種の密度から決まるので、直接定量的な議論に結びつけるのは難しい。慶應大の真壁らは CT の手法を援用した OES (総説として [40]) によってマグネトロンプラズマの測定をしている [41] が、このときは Ar の励起種を対象に、放電の機構に関する議論をしていた。

外部からのレーザー照射で基底状態の原子を励起し、中間状態への遷移による発光を観測するレーザー誘起蛍光分光法 (LIF) を用いて Ti スパッタプラズマ中の原子・イオン密度を評価する試みが、名古屋大の Gao, 佐々木ら [42] のグループによって ISSP2005 で報告されていた。彼らの手法で興味深いのは、励起レーザー光をシート状に入射し、その面に垂直な方向から蛍光を観測することで、密度の二次元マッピングを可能にする点である。まだ原因については明らかになっていないが、高圧力下での Ti イオンの分布が、ターゲットから遠方 (~4 cm) で高くなっているという測定結果が得られており、今後理論モデルと関連させた議論が発展することを期待したい。

筆者らはプラズマからの OES 測定でも、複数の発光線を組み合わせることで、原子密度での評価が可能ではないかと考え、実験を進めている。これは LIF と同様に 3 準位系を用いるもので、例えば Cu の場合は第二励起準位から基底状態へ落ちるときの 324.8 nm の発光と、同じ始状態から中間の準位に落ちるときの 510.6 nm の発光を同時に測定する。この両者の発光強度比は自然放出の条件下では不変なはずだが、実際には高圧力・高電力など、Cu 原子密度が高くなる状況下では、324.8 nm の強度の相対的な低下が観察される [43]。また T-S 間距離を変化させることによっても同様の変化が見られる [44]。これは 324.8 nm の光が周囲の基底状態の原子によって自己吸収されるからだと考えている。逆に言えば、外部から見える発光強度比より、プラズマ内部での原子密度分布を評価することが、原理的には可能なはずである。現在、移動ステージを用いて取得したこの二本の発光線のプロファイルより、CT 演算によって動径分布を計算することが可能になっており [45]、ここから密度分布を一種の逆問題として解くことが可能ではないかと考えている。

4 まとめ

スパッタ製膜プロセスの基礎的な理解に関連する最近の研究の流れを、ISSP2005 における報告を中心に解説した。計算機シミュレーションによるマグネトロンプラズマの理解は近年急速に進んでおり、自己無撞着なかたちで電位分布やイオン密度分布を求め、マグネトロン磁場に伴って生成されるエロージョントラックを予想することが既に可能となっている。

ただし、繰り返し触れたように、ターゲットからのスパッタ粒子の放出過程については、まだまだ未解明な部分が多い。この点については、未だ実験データの蓄積が必要な段階ではないかと考えている。逆に、それ以外のモデルや測定手法が充分精密になれば、ターゲットで起きている現象を逆に理解することも可能であるかもしれない。

実験的研究としては、粒子エネルギー分布、膜厚分布、密度分布などを評価する手法を紹介した。今後理論モデルとこれらの実験的な測定結果を比較・議論していくことで、スパッタプロセスの理解が進展していくことを期待している。

参考文献

- [1] R. Parsons: *Thin Film Processes II*, eds. J. L. Vossen and W. Kern (Academic Press, San Diego, 1991) Chap. II-4 p. 177.
- [2] S. M. Rossnagel and J. J. Cuomo: *Thin Solid Films* **171** (1989) 143.
- [3] D. M. Mattox: *J. Vac. Sci. Technol. A* **7** (3) (1989) 1105.

- [4] S. M. Rosnagel: *J. Vac. Sci. Technol. A* **21** (5) (2003) S74.
- [5] S. Berg and T. Nyberg: *Thin Solid Films* **476** (2) (2005) 215.
- [6] S. Swann: *Vacuum* **38** (1988) 791.
- [7] 元廣友美: *セラミックス* **33** (10) (1998) 805.
- [8] 中野武雄: *真空* **45** (9) (2002) 699.
- [9] T. E. Sheridan, M. J. Goeckner and J. Goree: *J. Vac. Sci. Technol. A* **8** (1990) 30.
- [10] J. K. Lee, S. S. Yang, H. C. Kim, G. J. Kim and S. J. Kim: *Proc. of ISSP2005* (2005) p. 2.
- [11] C. H. Shon and J. K. Lee: *Appl. Surf. Sci.* **192** (2002) 258.
- [12] I. Kolev and A. Bogaerts: *Proc. of ISSP2005* (2005) p. 35.
- [13] S. Kondo and K. Nanbu: *J. Vac. Sci. Technol. A* **19** (3) (2001) 830; *ibid.* **19** (3) (2001) 838.
- [14] M. J. Kushner, *et al.*: <http://uigelz.ece.iastate.edu/>
- [15] P. J. Stout, D. J. Denning, L. M. Michaelson, S. Bagchi, D. Zhang and P. L. G. Ventzek: *J. Appl. Phys.* **98** (2) (2005) 024904.
- [16] 真壁利明: *プラズマエレクトロニクス* (培風館, 1999); 9.2 節.
- [17] E. Shidoji, H. Ohtake, N. Nakano and T. Makabe: *Jpn. J. Appl. Phys.* **38** (4A) (1999) 2131.
- [18] E. Shidoji, N. Nakano and T. Makabe: *Thin Solid Films* **351** (1-2) (1999) 37.
- [19] P. Subramonium and M. J. Kushner: *J. Vac. Soc. Technol. A* **20** (2) (2005) 325.
- [20] M. W. Thompson: *Philos. Mag.* **18** (1968) 377.
- [21] Z. L. Zhang: *Phys. Rev. B* **71** (2) (2005) 026101.
- [22] H. Tsuge and S. Esho: *J. Appl. Phys.* **52** (7) (1981) 4391.
- [23] R. Elsing: *Surf. Coat. Technol.* **49** (1991) 132.
- [24] J. F. Ziegler: <http://www.srim.org/>
- [25] K. Wittmaack: *J. Appl. Phys.* **96** (5) (2004) 2632.
- [26] Y. Tanaka, E. Kim, J. Forster and Z. Xu: *J. Vac. Sci. Technol. B* **17** (1999) 416.
- [27] M. Sakamoto, E. Kusano, H. Zhang, N. Kikuchi and A. Kinbara: *Proc. of ISSP2003* (2003) p. 86.
- [28] H. F. Winters, H. J. Coufal and W. Eckstein: *J. Vac. Sci. Technol. A* **11** (3) (1993) 657.
- [29] H. Matsui, H. Toyoda and H. Sugai: *J. Vac. Soc. Sci. A* **23** (4) (2005) 671.
- [30] H. Toyoda and H. Sugai: *Proc. of ISSP2005* (2005) p. 48.

- [31] S. M. Rossmagel: *J. Vac. Sci. Technol. A* **7** (3) (1989) 1025.
- [32] D. Ito, Y. Miyamoto and K. Tominaga: *Proc. of ISSP2005* (2005) p. 133.
- [33] T. Nakano and S. Baba: *Proc. of ISSP2005* (2005) p. 44.
- [34] O. Kamiya, I. Yukimasa, K. Funatsu, T. Takahashi and Y. Hoshi: *Proc. of ISSP2005* (2005) p. 141.
- [35] H. R. Griem: *Principles of Plasma Spectroscopy* (Cambridge Univ. Press, Cambridge, 1997).
- [36] A. Ricard, C. Nouvellon, S. Konstantinidis, J. P. Dauchot, M. Wautelet, and M. Hecq: *J. Vac. Sci. Technol. A* **20** (4) (2002) 1488.
- [37] S. Konstantinidis, A. Ricard, M. Ganciu, J. P. Dauchot, C. Ranea and M. Hecq: *J. Appl. Phys.* **95** (2004) 2900.
- [38] T. Nakamura and K. Okimura: *J. Vac. Sci. Technol. A* **20** (1) (2002) 1.
- [39] K. Okimura and T. Nakamura: *J. Vac. Sci. Technol. A* **21** (4) (2003) 988.
- [40] T. Makabe and Z. L. Petrović: *Appl. Surf. Sci.* **192** (1-4) (2002) 88.
- [41] S. Miyake, N. Shimura and T. Makabe: *J. Vac. Sci. Technol. A* **10** (1992) 1135.
- [42] N. Nafarizal, N. Takada, J. Gao, K. Nakamura, Y. Sago and K. Sasaki: *Proc. of ISSP2005* (2005) p. 177.
- [43] T. Nakano, N. Ohnuki and S. Baba: *Vacuum* **59** (2000) 581.
- [44] 田中幸治, 中野武雄, 馬場茂: *真空* **47** (3) (2004) 277.
- [45] T. Nakano, K. Tanaka and S. Baba: *Vacuum* **74** (3-4) (2004) 387.