

磁気中性線放電プラズマの生成条件に関する研究

迫田, 達也
九州大学大学院総合理工学研究科エネルギー変換工学専攻

川上, 真
九州大学大学院総合理工学研究科エネルギー変換工学専攻

宮尾, 貴幸
九州大学大学院総合理工学研究科エネルギー変換工学専攻

内野, 喜一郎
九州大学大学院総合理工学研究科エネルギー変換工学専攻

他

<https://doi.org/10.15017/17449>

出版情報 : 九州大学大学院総合理工学報告. 19 (3), pp.323-329, 1997-12-01. 九州大学大学院総合理工学研究科
バージョン :
権利関係 :

磁気中性線放電プラズマの生成条件に関する研究

迫田 達也*・川上 真**・宮尾 貴幸**
内野 喜一郎***・村岡 克紀***

(平成9年8月29日 受理)

Studies of the Conditions Required for the Formation of a Magnetic Neutral Loop Discharge

Tatsuya SAKODA*, Makoto KAWAKAMI**, Takayuki MIYAO**,
Kiichiro UCHINO*** and Katsunori MURAOKA***

In order to reveal the conditions required for the formation of a neutral loop discharge (NLD) plasma, distributions of excited atoms, which were strongly related to distributions of ionization rates, were measured under various discharge conditions by using laser induced fluorescence spectroscopy and optical emission spectroscopy. It was found that the results of these measurements were consistent with the theoretically predicted dependencies of electron heating on the magnetic field strength, the RF electric field, and the RF frequency. In addition, it was shown that effects of electron - neutral collisions and of the finite size of the device set limitations on the formation of the NLD plasma.

1. ま え が き

半導体デバイスに用いられるプロセス用プラズマ源として、大面積にわたって一様で、プラズマパラメータが制御可能なものが求められている。これらの要求に応え得る新しいプラズマ源として、磁気中性線放電(NLD)プラズマ¹⁾が注目されている。同放電では、磁気中性線(NL)周りで荷電粒子の運動が非線形となって高効率の加熱が行われ²⁾、1mTorr程度の低ガス圧領域で高密度のプラズマを得ることができる。また、NLDプラズマはNLの制御によってプラズマの形状や形成位置を自由に変えることができる。これにより、プラズマの大口径化や、動的制御を介しての大面積にわたる一様プロセスなどへの対応が可能になると期待されている。

NLDプラズマの生成過程を把握するためには、NL周りで非線形な電子の運動が生じ得る条件を明らかにする必要がある。著者らは、これまでにレーザートムソン散乱法でNLDプラズマ中の電子温度、密度³⁾を測定し、また電離発生分布に関連する励起原子密度の分布をレーザー誘起蛍光法(LIF; Laser Induced Fluorescence)で測定してきた⁴⁾。それらの結果を衝突放射モデル⁵⁾を用いて解析した結果、電離はNL周りで集中的に起っていることから、NL上での電子の

加熱がNLDプラズマの生成に本質的役割を果たしていることを明らかにした。しかし、前報⁴⁾では限られた放電条件下での測定結果を基に考察した。本報では、磁場、電界、周波数、ガス圧等の条件を変えてNLDプラズマを生成し、LIFと発光分光法でプラズマ生成領域の変化を観測した。その結果をもとに、NLDプラズマの生成条件について検討を行った。

2. NLDプラズマ中の電子の運動

吉田氏らにより、NL周りの電子の運動が理論的に解析されている²⁾。ここでは、以下の検討に必要な関係式を示す範囲でこの理論の概要を述べる。Fig. 1(a)に示すような y 方向の磁界が存在し、 x 方向に磁場強度 B の値が直線的に変化しているとする。同時に、 z 方向に時間的に変化する(角周波数 ω)電界 $E = E_0 \sin \omega t$ が存在する場合を考える。 B は $x=0$ でゼロとなり、また $x = \pm L$ の点で電子サイクロトロン共鳴(ECR)を満たす磁場強度 $B_0 (= m_e \omega / e; m_e$ は電子の質量)になっているとする。位置と時間スケールは、 $\bar{x} \equiv x/L$, $\bar{t} \equiv \omega t$ のように規格化される。磁界で電界を規格化した換算電界強度 F は、次式のように定義される。

$$F = F_0 \sin \omega t, \quad F_0 = \frac{E_0}{L \omega B_0} \quad (1)$$

$x=0$ の周りで電子の運動方程式を解いて軌道を計算すると、 F_0 の値がオーダー1の時のみ、電子は

*エネルギー変換工学専攻博士課程
**エネルギー変換工学専攻修士課程
***エネルギー変換工学専攻

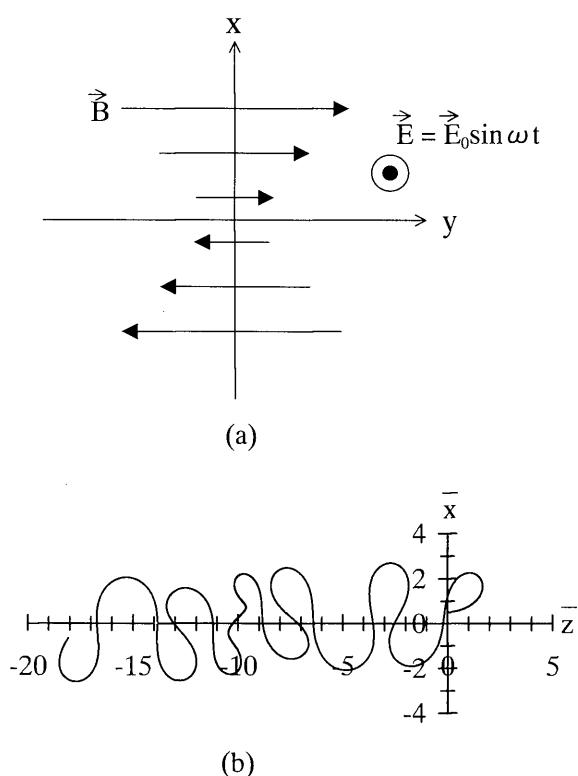


Fig. 1 (a) Configurations of the magnetic field B and the RF electric field E , and (b) the meandering motion of an electron in the B and E field.

$-2L < x < 2L$ の範囲で Fig. 1 (b) に示すような非線形で曲折した運動 (meandering motion) を行う。この領域が ECR 領域を含むので、電子は RF 電界よりエネルギーを吸収する。曲折運動する電子の得た運動エネルギーは、次式で求められる。

$$\varepsilon = m_e(L\omega)^2 \left(\frac{\bar{x}'^2 + \bar{z}'^2}{2} \right) \quad (2)$$

ただし、 \bar{x}' 、 \bar{z}' は、 x 方向、 z 方向の規格化された速度 ($d\bar{x}/d\bar{t}$ 、 $d\bar{z}/d\bar{t}$) である。

式 (1) より、 E_0 、 L 、 ω の値を変化して F_0 の値がプラズマ生成にどのように影響するかを実験的に調べるのが本論文の狙いである。

3. 実験装置と方法

NLD プラズマ発生装置と分光測定システムを Fig. 2 に示す。プラズマ発生用の真空放電容器は、ステンレス製で内径308mmである。磁場発生用のコイルとして、内径390mmのコイル1 (巻数60, 電流値 I_1)、コイル2 (巻数60, 電流値 I_2) と内径320mmのコイル3 (巻数120, 電流値 I_3) を放電管の外側に同軸上に配置した。NL は、コイル1, コイル3に同一方向、コイル2に逆方向の電流を流して形成した。半径100mmのNLを設定する場合、それぞれのコイルの電流値は、 $I_1=66.8\text{A}$ 、 $I_2=193\text{A}$ 、 $I_3=115\text{A}$ とした。また、その

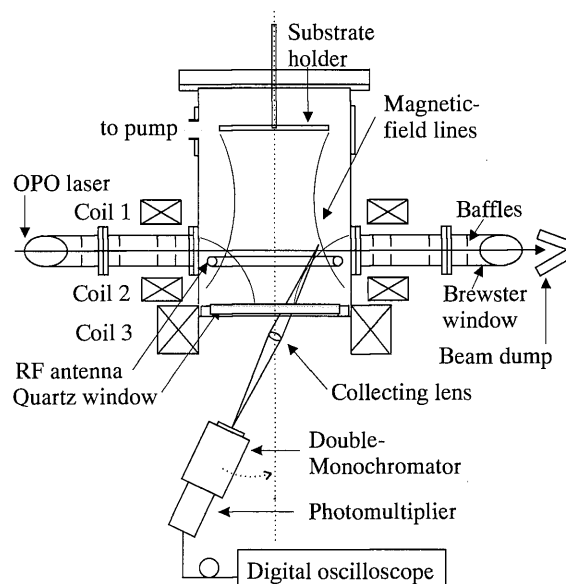


Fig. 2 Schematic arrangement of the experimental apparatus (not to scale). See the text for major dimensions.

時の NL を含む平面上の中心磁場強度は約 4mT であった。磁場強度は、ホール素子を備えたガウスメータで測定した。これにより、NL 位置を $\pm 2\text{mm}$ の精度で設定することができた³⁾。石英製のガラス管に挿入された半径130mmの RF アンテナ (巻数1) は、NL の形成位置から放電管の軸方向に20mm離れた位置に配置した。RF 周波数が 13.56MHz の場合、電子サイクロトロン共鳴磁場強度 B_0 は 0.5mT で、NL から B_0 になるまでの距離 L は、5.4mmであった。なお電界強度 E_0 は、市販の高周波電流センサー (変流器) で RF アンテナ電流を測定し、それによる誘導起電力から求めた。

放電ガスとしては Ar を 2mTorr の圧力に設定した。LIF による励起原子密度の測定は、He をトレーサーガスとして添加し、He 原子の $3^3\text{P}-4^3\text{D}$ (1700.238nm) 間で励起を行い $4^3\text{D}-2^3\text{P}$ (447.15nm) の蛍光を観測して行った。圧力は、レーリー-散乱法⁶⁾によって較正された隔膜真空計 (Baratron 390, フルスケール 10 Torr, 公称精度は読みの 0.08%) で測定した。これにより、 $\pm 10\%$ 以内でガス圧を設定することができる⁶⁾。トレーサーガスとして He を選択したのは、電子温度、密度と基底単位の密度が既知であれば励起単位の密度を求めることができる衝突放射モデル⁶⁾が確立されているためである。本実験では He 圧力は 3mTorr 添加したが、He の電離電圧 (24.6eV) が Ar の電離電圧 (15.8eV) に比べてずっと高いので、プラズマの電子温度、密度およびその空間分布は He の添加によって変化しなかった⁴⁾。

LIF の励起用光源には、Nd:YAG レーザー励起の波長可変固体レーザー (OPO, Mirage 500) を使用し

た. 繰り返し周波数は 10Hz, パルス幅は 5ns である. また, 線幅約 10 μ m 以内で 426nm ~ 2120nm までの波長掃引が可能であり, 最大出力は 500nm で 30mJ である. OPO から出力されたレーザービームを, NL を含む平面内において NL の中心軸を通るように入射した. 蛍光信号は, レーザービームと垂直方向から受光立体角 0.03 sr の集光レンズでダブルモノクロメータへと導き, 光電子増倍管で検出した. 観測体積は, $6 \times 1 \times 4 \text{ mm}^3$ である. これは, 順に集光レンズの集光面でのレーザービームの直径とダブルモノクロメータのスリット幅と高さから決定される. 半径方向分布の測定は, 受光系を放電管の中心軸 ($r = 0 \text{ mm}$) から $r = 120 \text{ mm}$ まで水平移動させて行った.

発光分光法によるプラズマからの発光の観測は, He の 3^3P の密度を反映する $3^3\text{P} - 2^3\text{S}$ (388.9nm) の遷移間の放射光について行った. 発光強度は, 受光立体角 $1.5 \times 10^{-3} \text{ sr}$ の集光レンズでスリット高さと幅がそれぞれ 4 mm, 0.2mm のダブルモノクロメータへと導き, 光電子増倍管で検出した. 発光分光法の場合, 受光系は磁力線に沿って流れるプラズマを接線的に観測できるように配置した. すなわち, Fig. 2 中で示したレンズの位置を固定点として, NL 平面上で $r = 0 \text{ mm}$ に相当する 0 度から 150mm に相当する 28.5 度まで, 受光系の角度を変えた.

4. 実験結果と検討

4.1 励起原子密度の分布

LIF によって測定した He 3^3P 準位の密度分布を Fig. 3 に示す. NL 半径は 100mm, RF パワーは 400W,

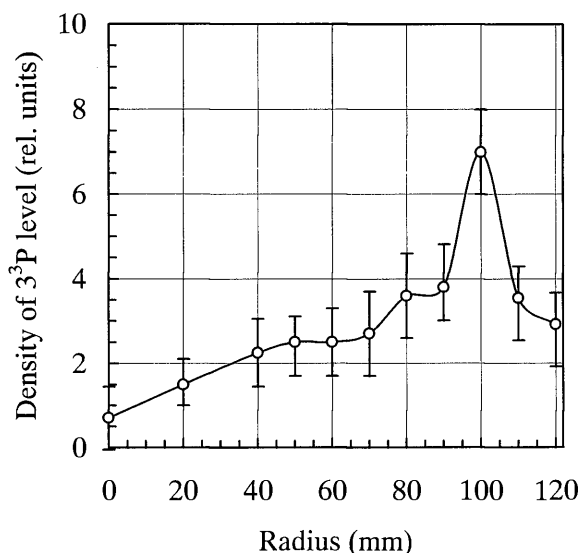


Fig. 3 Spatial profile of the population density at the 3^3P level for the NL radius $R_{\text{NL}} = 100 \text{ mm}$. The RF power was 400 W and the magnetic field strength on the chamber axis was 4 mT.

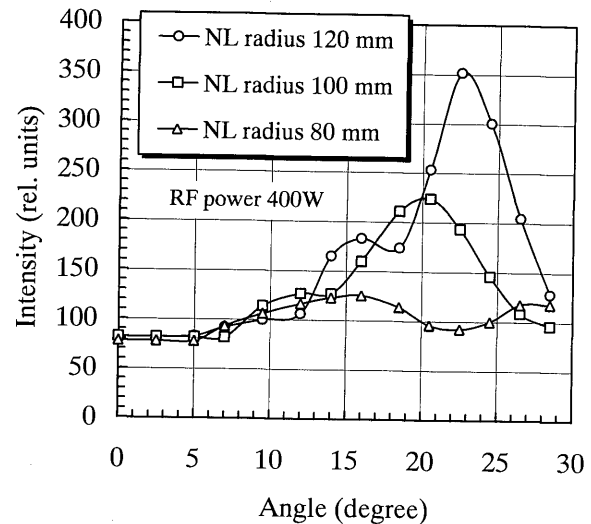


Fig. 4 Spatial profiles of emission intensities at 389nm for the NL radius $R_{\text{NL}} = 80, 100$ and 120 mm . The RF power was 400W.

NL 上の電界強度 E_0 は 175V/m と設定した. この時の換算電界 F_0 の値は, (1)式に従って計算を行うと 0.79となる. 同図より, 励起原子密度は NL 上で鋭いピークを持ち, その他の場所に比べて 2 倍以上大きいことがわかる. NL 上では, 電子温度も周辺部に比べて高い³⁾. また, 衝突放射モデルを用いた解析から, 電離は NL 上で集中的に行われることも明らかにされている⁴⁾. 従って, 大部分の励起原子は $r = 100 \text{ mm}$ の NL 上で生成されていると結論できる.

このような励起原子の発生部を示す 3^3P 準位の密度ピークは, 3 節に述べた配位の発光分光法によっても確認することができる. Fig. 4 に, NL 半径を変化させた時のその発光分布の変化を示す. 同図より, NL 半径の変化に伴って, 発光のピーク位置, すなわち励起原子の発生部が変化していることがわかる. LIF による 3^3P 準位の密度測定は, 局所値が直接求められるという大きな利点があるものの, 測定の SN 比の制約から限られた放電条件下でしか信号を得ることができなかった. それに比べて, 発光分光法は視線に沿う放射強度であるため結果の解釈が困難なことが多い. しかし, 信号の時間積分によりいくらかでも SN 比を上げることができるので, 一旦その分光データが物理的に何を意味するかが明確になれば, 広い放電条件下での測定に用いられる. そのため, 以下の NLD プラズマ生成の磁場強度, RF パワーなどのパラメータ依存性を調べる測定には, この発光分光法を用いた.

4.2 磁場強度及び RF パワー依存性

NLD プラズマ生成において, 式 (1) の長さ L の効果がどう現われるかを調べるために, 磁場強度を変化させてプラズマを生成し, 発光を観測した. Fig. 5 に, NL 半径は 120mm, 周波数は 13.56MHz, 入力パ

ワーは400Wとした場合に、発光強度がピークとなる観測角22.5度の点で規格化した発光分布の変化を示す。図中の点線で示したICPは、磁界を形成せずにプラズマを生成した場合のものである。(1)式より、磁場強度を小さくすると L が大きくなり、換算電界 F_0 は小さくなる。中心磁場強度が1.2, 2.4, 3.5, 5.9 mTのときの L は、それぞれ21, 10, 6.5, 3.8mmであった。また F_0 の値はそれぞれ、0.24, 0.49, 0.76, 1.3である。同図より、磁場強度が小さくなり F_0 が小さくなるにしたがって、発光の分布がICPと類似した平坦な分布に近づくことがわかる。これは、 F_0 が小さくなるほど電子がエネルギーを得る領域が広がり、プラズマ生成部を局在化できないことを表している。

同じくNL半径120mmで、中心軸上の磁場強度を3.5mT一定とし、RF入力パワーを変えて、 F_0 を上述の磁場強度依存性で設定した F_0 の範囲と同等にして発光を観測した。RF入力パワーを100から800Wまで変化させた時の発光分布の変化をFig. 6に示す。入

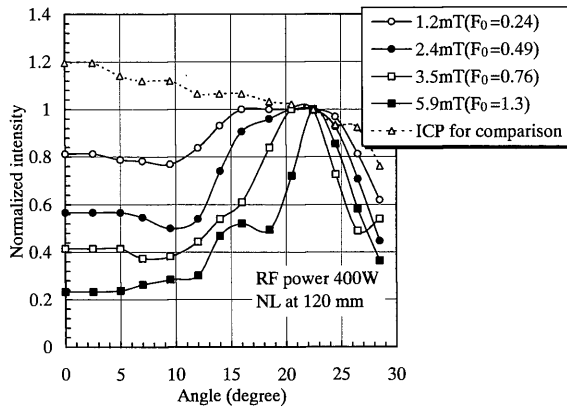


Fig. 5 Spatial profiles of emission intensities at 389 nm for magnetic field strengths on the chamber axis of 1.2, 2.4, 3.5, and 5.9 mT. The RF power was 400W. The profiles were normalized at 22.5°.

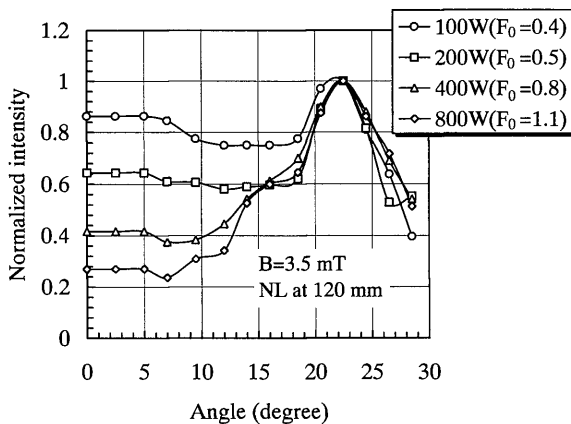


Fig. 6 Spatial profiles of emission intensities at 389 nm for RF powers of 100, 200, 400, and 800 W. The magnetic field strength on the chamber axis was 3.5 mT. The profiles were normalized at 22.5°.

Table 1 Values relevant to the formation of the NLD plasma for RF frequencies of 13.56, 10, and 7 MHz. F_0 and $\langle \epsilon \rangle$ were calculated by equations (1) and (2), respectively.

Frequency (MHz)	E_0 (V/m)	B_0 (mT)	L (mm)	F_0	$\langle \epsilon \rangle$ (eV)
13.56	102	0.48	4.0	0.65	0.44
10	75	0.36	3.0	1.16	0.38
7	42	0.25	1.5	2.55	0.17

力パワーが100, 200, 400, 800Wの時の F_0 値は、それぞれ0.4, 0.5, 0.8, 1.1である。発光強度の分布は、Fig. 5と同様に観測角22.5度の点で規格化している。Fig. 6から、磁場強度依存性と同様に、 F_0 値が小さいほど平坦な分布となり、プラズマ生成部が局在化していないことがわかる。また、中心部(0度)に対するピーク位置(22.5度)の発光の強度比を取った場合、磁場、電界強度が異なっても F_0 値が同等であれば、その比はほぼ等しい。このように、プラズマ生成部が局在化される度合いは、磁場強度、RF入力パワーを変えて F_0 の値を変えることによって変化することが明らかになった。

4.3 周波数依存性

周波数依存性を明らかにするために、入力パワー及び磁場強度を一定にして周波数を変えてプラズマからの発光を観測した。周波数を13.56, 10, 7 MHzと変えた時の L, B_0, F_0 の各諸量をTable 1に示した。入力パワー $P=100W$ を一定にしているの、電界強度 E_0 は、 ω に比例する。また、周波数が変わることによって B_0, L も変化する。(1)式に従うと、結果としてRF入力パワーが一定であっても周波数を低くすることによって F_0 の値はおおよそ $1/\omega^2$ に比例して大きくなる。また、Table 1中の $\langle \epsilon \rangle$ は、 $t=0$ で $\bar{x}' = \bar{z}' = 0$ の初期条件で曲折運動する電子の運動を計算したうえで、各位置の運動エネルギーを(2)式に従って計算した平均値である。このように、2節で示した理論に従うと、 F_0 と共に $\langle \epsilon \rangle$ も変化する。これに対して、RF電流がNLのみに流れ、電子が単純に電界方向に加速されるようなRF誘導結合型プラズマと類似したモデルを考えてみる。この場合、電子はRF電界の中で単振動し、電子の得ることのできる最大の運動エネルギーは、

$$\epsilon_0 = \frac{1}{2} m_e \left(\frac{eE}{m_e \omega} \right)^2 \quad (3)$$

となる。電界 E は ω に比例するので、結局、周波数が変化しても電子の運動エネルギーは変化しない。Fig. 7に、周波数を13.56, 10, 7MHzと変えた時の発光強度がピークとなる観測角22.5度での発光の強度

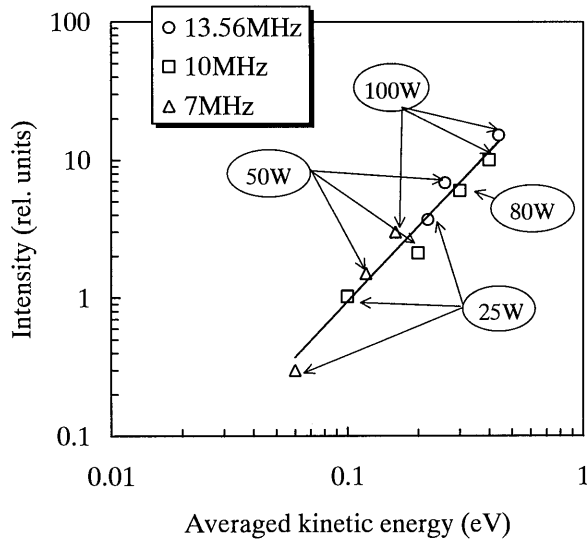


Fig. 7 Variation of emission intensities at 389 nm at an angle of 22.5° for RF frequencies of 13.56, 10, and 7 MHz. The magnetic field strength on the chamber axis was 5.9 mT. Values in abscissa were calculated by the equation (2).

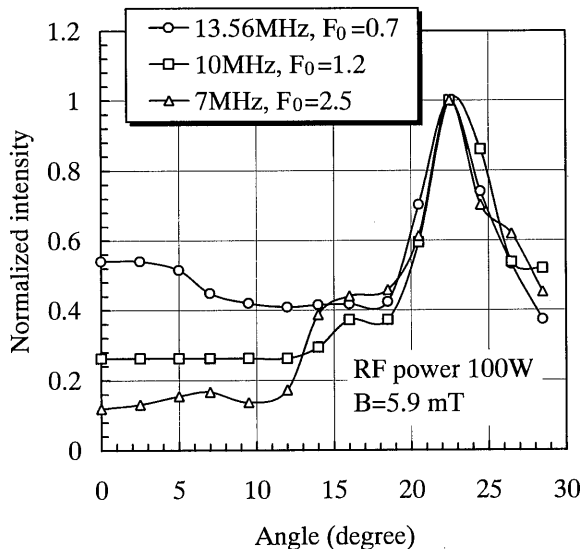


Fig. 8 Spatial profiles of emission intensities at 389 nm for RF frequencies of 13.56, 10, and 7 MHz. The RF power was 100 W and the magnetic field strength on the chamber axis was 5.9mT. The profiles were normalized at 22.5°.

変化を示す。横軸は、各々の実験条件において (2) 式から計算される電子の平均の運動エネルギーを表している。磁場を印加せずにプラズマを形成した場合の発光強度は、周波数を変えても変化しなかった。これは (3) 式からの予想と一致するものである。それに対して、NL を形成してプラズマを生成した場合は、同じ入力パワーであっても **Fig. 7** のように発光強度は変化し、(2) 式から計算されるエネルギーの増加に従って増加していることがわかる。このように、周波数依存性は、(2) 式から計算される $\langle \epsilon \rangle$ と相関が

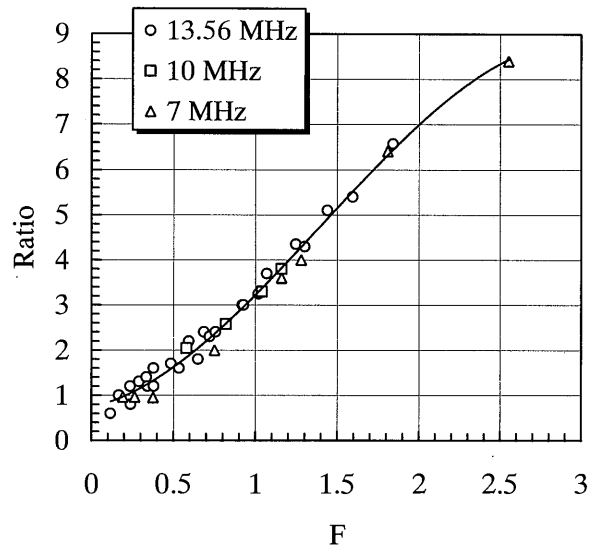


Fig. 9 Variation of the ratios of emission intensities against normalized electric field strength F_0 .

大きいことを示した。入力パワー100W で周波数を変えた時の発光分布の変化を **Fig. 8** に示す。同図より、磁場強度、RF パワー依存性と同様に F_0 値が大きくなるにしたがってプラズマ生成部がより局在化されていることが明らかである。

4.4 F_0 値によるプラズマ生成条件の検討

前項までの結果で、プラズマ生成部が局在化される度合いは F_0 の値によって変化することを示した。そこで、中心部 (0度) に対するピーク位置 (22.5度) の発光の強度比を発光強度比と定義して、磁場、電界及び周波数を変えて F_0 値を変えた場合の発光強度比の変化を **Fig. 9** に示す。同図より、磁場、電界、周波数の条件が異なった場合でも発光強度比は F_0 値の増加に伴ってほぼ直線的に増加することが明らかである。このように、NLD プラズマの特徴は F_0 の値によって統一的に扱うことができる。また、 $F_0 < 0.2$ での発光の分布は **Fig. 5** 中の ICP のような分布になり、観測角22.5度に発光のピークは存在しない。NL 周りで局所的な加熱が行われ、プラズマ生成部が局在化したプラズマを NLD プラズマとみなすならば、NLD プラズマ生成のための F_0 の下限値は0.2程度となる。

NLD プラズマの生成限界を実際にプロセスを行う観点から考えると、 $F_0 > 0.2$ 以外にも考慮に入れなければならないことがある。電界強度 E_0 が大きくて F_0 値が0.2以上であっても、磁場強度が小さくて L が放電管の半径と同等である場合や、電子-原子間平均自由行程よりも大きいような場合 (これについては次の4.5節で検討する) には、電子は曲折運動を行うこともできないし、NL の制御によるプラズマの密度分布の制御も不可能である。他に考慮すべき因子は、

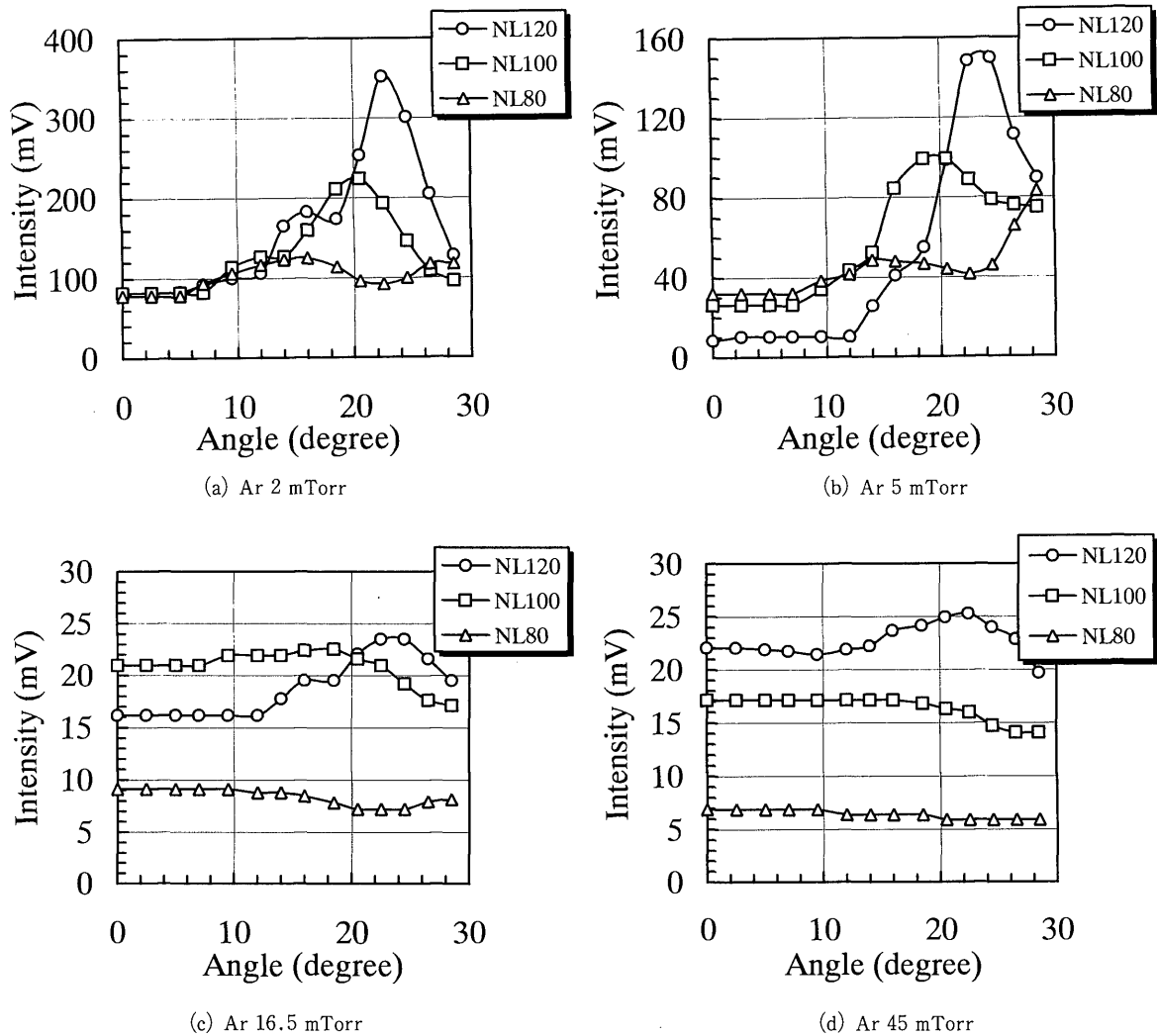


Fig. 10 Spatial profiles of emission intensities for Ar pressures of (a) 2mTorr, (b) 5mTorr, (c) 16.5mTorr and (d) 45mTorr. The RF power was 100W and the magnetic field strength on the chamber axis was 5.9mT.

電子の得るエネルギーの絶対値に関することである。効果的に電子が加熱されて電離発生頻度が高くなるためには、電子の運動エネルギーが大きいことが望ましい。Fig. 9で示されているように、同じ入力パワーでも周波数を下げると F_0 値は大きくなり発光強度比も大きくなる。しかし、(2)式から明らかのように周波数が下がると電子の得るエネルギーは小さくなり、電離や励起原子の生成が抑えられる。すなわち、同じ入力パワーの場合、周波数を下げると高密度のプラズマが生成されにくくなる。

4.5 圧力依存性

NLD プラズマ生成のための動作圧力の上限を検討した。Fig. 10に Ar 圧力を 2mTorr から 45mTorr まで変化させた時の発光分布の変化を示す。Fig. 10より、圧力が上がるに従ってプラズマの分布が平坦な分布になっていくことがわかる。(c), (d)の圧力ではNL部で局在化したプラズマは生成されていない。(c)の場合に対応する16.5 mTorr中の電子-原子間

の平均自由行程は約10mmである。電子は0から $2L$ の範囲で曲折運動を行うので、この長さは電子が曲折運動をしてNLの周りを一周する距離 $4L = 20\text{mm}$ よりも短い。その結果、NL周りの電子は、曲折運動を達成する前に原子と衝突を行い、NLD特有の効果的な加熱を行うことができない。(c), (d)の圧力条件で生成したプラズマはこのような現象を反映したプラズマである。以上のようなことで、動作圧力は曲折運動が可能な長さ以上の平均自由行程となる圧力に設定する必要がある。

5. む す び

磁場、電界、周波数、圧力等の条件を変えて生成したプラズマのプラズマ生成領域の変化を発光分光法で観測し、NLD プラズマの生成条件について検討した。その結果をまとめると次のようになる。

(1) NLD プラズマ形成条件の磁場、電界、周波数、ガス圧への依存性を調べ、これが換算電界 F_0 で

統一的に取り扱えることを示した。

(2) NLD プラズマの生成のためには、 F_0 の値を 0.2 以上に設定する必要がある。また同時に、容器サイズが有限であることを考慮して、それより磁気中性線 (NL) から電子サイクロトロン共鳴点までの長さ L を十分に小さくしなければならない。

(3) NLD プラズマを生成するためには、曲折運動 (meandering motion) が可能な長さ以上の平均自由行程をもつ動作圧力に設定する必要がある。

本研究では、換算電界強度 F_0 の下限については議論できたが、実験装置の制約から F_0 の上限について明らかにするに至らなかった。理論的な検討²⁾から、 F_0 値が10以上になると、電子は電界の周期運動に追

従するのみで NLD 特有の運動は行わないと報告されている。今後、このような F_0 の上限についても検討する必要がある。

References

- 1) T. Uchida: Jpn. J. Appl. Phys. **33** (1994) L43.
- 2) Z. Yoshida and T. Uchida: Jpn. J. Appl. Phys. **34** (1995) 4213.
- 3) T. Sakoda, H. Iwamiya, K. Uchino, K. Muraoka, M. Itoh and T. Uchida: Jpn. J. Appl. Phys. **36** (1997) L67.
- 4) T. Sakoda, H. Iwamiya, K. Uchino and K. Muraoka: Jpn. J. Appl. Phys. (to be published).
- 5) T. Fujimoto: J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer **21** (1979) 439.
- 6) T. Sakoda, Y.B. Song, K. Uchino, K. Muraoka, M. D. Bowden and H. Yamakawa: Journal of the Vacuum Society of Japan, **36** (1993) 563 [in Japanese].