RF 放電プラズマによる基板の温度上昇

正員 高 木 浩 一 (岩手大)
 学生員 佐 山 国 央 (岩手大)
 学生員 高 橋 淳 (岩手大)
 正員 藤 原 民 也 (岩手大)
 正員 永 田 雅 克 (フジクラ)
 正員 小 野 幹 幸 (フジクラ)
 非会員 Muaffaq Achmad Jani (岩手大)

Temperature Rise in a Birefringent Substrate by RF Discharge Plasma

Koichi Takaki, Member, Kunioh Sayama, Student Member, Atsushi Takahashi, Student Member, Tamiya Fujiwara, Member (Iwate University), Masakatsu Nagata, Member, Motoyuki Ono, Member (Fujikura Ltd.), Muaffaq Achmad Jani, Non-member (Iwate University)

Temperature rises of a birefringent substrate (LiNbO_3) have been measured in an argon RF discharge plasma. The measurement method is based on monitoring the variation of natural birefringence with temperature by laser interferometry. Using this method, the dependence of substrate temperature rise on applied RF power and gas pressure has been investigated. The evaluation of the temperature curves shows that heat flux from the plasma towards the substrate is independent of time and temperature. The magnitude of the flux differs largely from the applied power, and approximately 0.4% of the power. By measuring electron density, electron temperature and plasma potential with Langmuir probe, the energy of the ions incident on the substrate is estimated. The ion flux towards the substrate is calculated from the energy of ions and is compared with the measured heat flux. The dependence on the applied power is in approximate agreement between those fluxes. The temperature distribution over the substrate thickness is simulated numerically using the finite difference method.

キーワード：プラズマプロセス，RF 放電，基板温度，複屈折，レーザ干渉，熱流束

1. ま え が き

プラズマプロセスにおいて基板温度は成膜速度や膜質に影響するパラメータであり，その計測と制御は重要である。基板温度の測定法はいろいろあるが^{(1)~(5)}，熱電対を用いる方法が一般的である。しかし，この方法には基板表面の状態や気体の流れを変えるという欠点がある。

光学的な方法は基板に対して非接触であり，その問題は避けられる。Bondらは，基板の上下二つの面で反射する光を干渉させ，熱膨張で発生する干渉フリンジの数からガラス基板の温度測定を行った⁽⁶⁾。この計測法は，その後PMMA基板の温度測定などにも用いられている⁽⁷⁾。しかし，この方法は反射光を用いるため平行平板型電極の装置には使用しにくいという欠点がある。著者らは，異方性の基板を用い，その複屈折でレーザ干渉を発生させ，そのフ

リンジ数から基板の温度上昇を求める方法を考案した⁽⁸⁾⁽⁹⁾。この方法では透過光を用いることから，電極間隔の狭い平行平板型にも応用できる。本研究では，この方法を用いて基板の温度上昇を測定するとともに，数値解析を行い基板への熱流束を求めた。

2. 実験装置および温度測定法

〈2・1〉 実験装置 実験装置の概略を図1に示す。容器内の二つの平板電極は直径120 mmのステンレス製であり，そこに13.56 MHzの高周波電圧を印加し放電プラズマを発生させる。電極間隔は4 cmである。封入気体にアルゴンを使用し，約250 cc/minの流れの状態で放電させる。基板には四角柱形状の LiNbO_3 結晶(4 mm×2.5 mm×20 mm)を用い，それを水冷可能な下側の電極上に置く。プラズマの電子温度や空間電位はラングミュア単探

図 1 実験装置

Fig. 1. Schematic diagram of the experimental setup.

図 2 基板温度とフリンジ数の関係

Fig. 2. Relationship between substrate temperature and number of fringes.

針を使って測定する。

〈2・2〉 温度測定法 基板温度測定のため、直径約 1 mm の He-Ne レーザ光を、二つの光学的主軸に対して 45°傾いた面で振動するように偏光板で直線偏光し、基板に入射する。レーザ光が基板を透過すると常光と異常光の間に位相差が生ずる。位相差 δ は次式で与えられる。

$$\delta = 2\pi \Delta n l / \lambda \quad \dots\dots\dots (1)$$

ここで、 Δn ：常光と異常光に対する屈折率の違い、 λ ：レーザ光の波長、 l ：結晶長

基板として用いた LiNbO₃ の Δn は温度で変化し⁽¹⁰⁾、本研究の温度範囲では次式で近似することができる。

$$\Delta n = 4.3 \times 10^{-5} T + 8.68 \times 10^{-2} \quad \dots\dots\dots (2)$$

ここで、 T ：基板の温度

また、結晶長は熱膨張で次式のように変化する。

$$l = l_0(1 + \alpha T) \quad \dots\dots\dots (3)$$

ここで、 l_0 は 0°C における長さで 20 mm、 α は熱膨張率で光の伝搬方向では $2 \times 10^{-6} \text{ } ^\circ\text{C}^{-1}$ である。位相差 δ が 2π を超えるごとに光検出器の出力波形にはフリンジが現れる。フリンジは温度差によるもので、温度が上昇しても低下しても現れる。しかし、プラズマの存在で基板温度に変化が起こるとすれば、その変化は温度上昇によるものと考えることができる。それゆえ、ここではフリンジは基板温度の上昇を示すものとして扱う。図 2 は (1)～(3) 式を使って

計算で求めたフリンジ数 ($\delta/2\pi$) と基板温度の関係である。フリンジ数と温度の関係は直線的であり、(2) 式を与える直線とほとんど一致している。これは、熱膨張による δ の変化が Δn による変化に比べて十分小さく、(3) 式は影響しないためである。直線の傾きから 1 フリンジは約 0.74°C の基板温度上昇に対応している。

3. 基板の温度変化

放電容器内を真空状態 (10^{-6} Torr) にし、RF 電力を投入してもプラズマが存在しなければ光検出器の出力にフリンジが現れないことを確かめた。このことから RF 電力による基板の誘電体加熱は無視できる。フリンジ数から得られる値は温度の上昇分 (温度差) であり、温度を求めるには初期温度が分かっている必要はない。基板の初期温度を正確に求めることは困難であるため、測定値は基板温度の上昇分のままで扱う。

図 3 は、30 分間電力を投入してプラズマをつけた後、電力を切った場合の基板温度の時間的変化を示している。気圧は 150 mTorr、RF 電力は 100 W であり、下側の電極は 20°C で水冷している。基板に出入りする熱量と基板の温度上昇に要する熱量の関係を表す熱平衡式を解くと、プラズマによる基板温度上昇 ΔT は次式ようになる。

$$\Delta T = \Delta T_{\max} [1 - \exp(-t/\tau)] \quad \dots\dots\dots (4)$$

また、温度上昇 ΔT_0 、時刻 t_0 において電力供給をやめた場合の温度変化は次式ようになる。

$$\Delta T = \Delta T_0 \cdot \exp[-(t - t_0)/\tau] \quad \dots\dots\dots (5)$$

ここで、 t 、 τ および $\Delta T_{\max}$ はそれぞれ電力投入からの時間、時定数および平衡状態に達したときの最終温度上昇である。また、時定数 τ 、最終温度上昇 $\Delta T_{\max}$ はそれぞれ次式で与えられる。

$$\tau = \rho c d / h \quad \dots\dots\dots (6)$$

$$\Delta T_{\max} = Q / h S \quad \dots\dots\dots (7)$$

ここで、 ρ ：質量密度、 c ：比熱、 d ：基板の厚さ、 h ：熱伝達係数、 Q ：基板に入る熱流束、 S ：基板の面積

図 3 において、基板温度は電力を投入している 30 分まで (4) 式に、30 分からは (5) 式にほぼ従っていることが分かる。また、時定数は温度が上昇している領域、減少し

図 3 基板温度の時間的变化

Fig. 3. Temperature of the substrate as a function of time.

図 4 電極水冷と水冷しない場合の基板温度上昇

Fig. 4. Comparison between substrate temperature rises in the case of cooling and non-cooling electrodes.

ている領域ともに約 6 分である。図 4 は基板を置く電極が水冷のときと水冷しないときの基板温度上昇の比較である。図より、水冷しない場合の基板温度は時間とともに上昇し続け、平衡状態に達しないことが分かる。これは、基板温度が上がり電極への熱伝達が大きくなると、電極の温度が上がり基板から電極への熱伝達を小さくするように働くためと考えられる。電極を水冷した場合も冷却水から基板と接している面まで 4 mm の厚さがあるため、電極表面温度の上昇による影響は現れるが、この影響は水冷しない場合に比べ小さい。

図 5 は電極を水冷した場合の基板温度の上昇曲線で、パラメータとして気圧と RF 電力を変えている。基板温度の上昇は RF 電力が大きいほど、気圧が低いほど大きいことが分かる。RF 電力の増大はプラズマ密度を高め、プラズマからの熱流束を増加させる。また、気圧に関しては以下のように説明できる。本実験において基板は電極上に乗せただけで接着などは行っていない。このため、基板から電極への熱伝達は基板・電極間に入り込んだガスにより行われる。気圧が高い場合、熱伝導に寄与できる気体分子数が

(a) 気圧をパラメータとした場合

(b) 投入電力をパラメータとした場合

図 5 電極を水冷した場合の基板温度上昇

Fig. 5. Substrate temperature rises with water-cooling electrode.

多いため、熱伝達係数 h は大きくなる。(7)式より、 h が大きくなると $\Delta T_{\max}$ が小さくなる。気圧上昇による温度の減少は主に熱伝達係数の変化によるものと考えられる。

4. 数値解析

本研究で使用したレーザー光のビーム径は約 1 mm であり、測定から得られる値はこのビーム内の平均な温度と言える。プラズマプロセスで必要とするのは基板表面の温度である。そこで、数値解析を行い基板内の温度分布を求め、基板の表面温度を求めた。

基板の厚さ方向の温度分布は次の熱伝導方程式を解くことにより得られる。

$$c\rho \frac{\partial T}{\partial t} - k \frac{\partial^2 T}{\partial x^2} = 0 \quad \dots\dots\dots (8)$$

ここで、 T : 温度、 c : 比熱、 ρ : 質量密度、 k : 熱伝導率

計算では基板材料物性値から $c=0.58 \text{ J/g}\cdot^\circ\text{C}$ 、 $\rho=4.64 \text{ g/cm}^3$ 、 $k=0.3 \text{ J/m}\cdot\text{s}\cdot^\circ\text{C}$ とする。変数 t および x は、それぞれ時間とプラズマに面した基板表面からの距離である。基板の厚さを d 、基板の初期温度を T_0 とし、境界条件として電極温度は T_0 で一定とする。

(i) 初期条件: $t=0$ で $T=T_0$

(ii) 境界条件:

$x=0$ で

$$k \frac{\partial T}{\partial x} = -\frac{Q}{S} \dots\dots\dots (9)$$

$x=d$ で

$$k \frac{\partial T}{\partial x} = -h[T(d) - T_0] \dots\dots\dots (10)$$

ここで、 Q : プラズマから基板に入る熱流束 (W), S : 基板表面の面積 (m^2), h : 基板の熱伝達係数 ($\text{W}/\text{m}^2\cdot^\circ\text{C}$)

平衡状態に達したときの最終温度は基板に入る熱流束 Q と基板の熱伝達係数 h に依存するが、時定数 τ は h に依存するだけで Q には依存しない。したがって、計算パラメータとして h を変えながら計算で得られる時定数が実験値と一致する場合を見いだすことにより熱伝達係数 h の大きさを知ることができる。

図6は、初期温度が 20°C でプラズマからの熱流束が 1 W の場合の基板温度の時間的变化である。計算は $\rho = 4.64 \text{ g}/\text{cm}^3$, $c = 0.58 \text{ J}/\text{g}\cdot^\circ\text{C}$, $d = 2.5 \text{ mm}$ として行った。基板の温度上昇は図6のカーブに従うことが予想される。しかしながら、本実験では他の報告^{(1)~(3)}と比較して測定時間が長いこと、基板の温度上昇が数 $^\circ\text{C}$ 程度と小さいことより、冷却水と電極表面との温度差が基板の温度上昇に対して無視できなくなることが予想される。図7に、気圧 200 mTorr, RF 電力 200 W のときの基板温度の測定値から冷却水と電極表面との温度差を取り除き、電極表面に対する基板の温度上昇曲線を求めた結果を示す。冷却水に対する電極表面温度の上昇曲線は、実験で得られた基板温度の上昇曲線を基板温度の上昇曲線と電極温度の上昇曲線の時定数の異なる二つの関数の和と考え、熱容量が大きく長い時定数を有する電極の温度上昇を、(4)式を用いてカーブフィットすることで求める。図7中の fit. 2 にその結果を示す。次に、測定結果より fit. 2 を引くことで、電極表面に対する基板の温度上昇曲線 fit. 1 が求まる。これを図6に示す解析と比較することで基板と電極との間の熱伝達係数を求めた。図8に RF 電力および気圧と熱伝達係数と

図6 熱伝達係数をパラメータとした計算による温度上昇曲線

Fig. 6. Calculated temperature rises versus time, with heat transfer coefficient as parameter.

の関係を示す。図より、熱伝達係数は $15 \sim 50 \text{ W}/\text{m}^2\cdot^\circ\text{C}$ の範囲にあり、気圧が高いほど大きく、RF 電力の影響は小さいことが分かる。またこのときの時定数は3分から7分となる。使用気体、気圧範囲、RF 電力の大きさなどの放電条件がほぼ同じである PMMA 基板の研究報告では時定数は 50 秒であることが述べられている⁽⁷⁾。本研究の時定数とに大きな差異があるが、これは基板の物性値と寸法の違いによるものであり熱伝達係数には大きな相違はないことが分かる。すなわち、PMMA 基板では $\rho = 1.18 \text{ g}/\text{cm}^3$, $c = 1.48 \text{ J}/\text{g}\cdot^\circ\text{C}$, $d = 1.35 \text{ mm}$ であり、これらの値を(5)式に代入すると $h = 47 \text{ W}/\text{m}^2\cdot^\circ\text{C}$ が得られる。熱伝達係数の大きさは境界層の状態に依存する。例えば、熱がガラスから空気へ伝達する場合でも、静止状態の空気では $3 \sim 30 \text{ W}/\text{m}^2\cdot^\circ\text{C}$, 流れの状態では $10 \sim 500 \text{ W}/\text{m}^2\cdot^\circ\text{C}$ と変化する⁽¹¹⁾。装置の違いからくる境界層の細かい相違を考慮すれば、本研究で得た熱伝達係数の大きさは同様の実験条件を使用する他の研究グループの値とほぼ一致すると言える。

fit. 1: 基板温度上昇, fit. 2: 電極表面温度上昇

図7 基板の温度上昇と電極表面の温度上昇の分離

Fig. 7. Separation of temperature rises in the substrate and the electrode surface.

図8 基板の熱伝達係数

Fig. 8. Heat transfer coefficient of the substrate.

図 9 基板内の温度分布

Fig. 9. Temperature distribution over the substrate thickness.

図 9 は計算で求めた基板内の厚さ方向の温度分布である。横軸はプラズマに面する表面からの距離である。また、計算は $Q=0.4\text{ W}$, $h=18\text{ W/m}^2\cdot^\circ\text{C}$ で行っている。放電開始から 4 分までの温度分布は過渡状態にあることを示す非直線的な形である。定常状態になるまでの時間は d^2cp/k の値に依存するが、5 分以降の温度分布は直線的であり熱流束が基板内で一様になっていることを示している。定常状態における基板内の温度勾配は約 0.118°C/mm で、両面の温度差は約 0.27°C である。これは平均の温度上昇の約 13% に相当する。また、レーザー光のビーム径内の平均温度と基板全体の平均温度とのずれは 1% 以内となる。

5. 熱 流 束

基板に入る熱流束 Q は、図 8 に示した熱伝達係数 h および平衡状態に達したときの最終温度 ΔT_{max} を用いて求められる。図 10 に、気圧 50 mTorr における熱流束と RF 電力との関係を示す。熱流束は下部電極上で一様と仮定して、電極全体に入り込む量として取り扱っている。図より、熱流束は RF 電力 100 W に対して約 0.4 W であり、このときの面密度は 3.5 mW/cm^2 であること、また RF 電力にほぼ比例することが分かる。

熱流束はイオン流束と熱拡散による中性分子の衝突などから構成されると考えられる。使用気体、気圧などの条件がほぼ同じである研究報告では、熱流束をイオン流束として算出した電流密度がイオン飽和電流とほぼ一致することが述べられている⁽¹⁾。従って、図 10 に示す熱流束の大部分はイオン流束よりなることが予想される。図 10 中の白丸はプラズマパラメータより求めたイオン流束を示している。プラズマパラメータはプローブを用いて求めた。基板による自己バイアスを仮定すると、プラズマから基板に入るイオン流束 Q_i は次式のようになる。

$$Q_i = J_i \cdot S (V_s - V_T) \quad (11)$$

ここで、 J_i : イオン飽和電流, V_s : プラズマ電

図 10 RF 電力と基板への熱流束との関係

Fig. 10. Heat flux from plasma to the substrate as a function of RF power.

図 11 RF 電力に対するプラズマパラメータ

Fig. 11. Plasma parameters as a function of RF power.

位, V_T : 自己バイアス電圧, S : 基板の面積
また、イオン飽和電流 J_i は次式で与えられる。

$$J_i = 0.6e \cdot n_e (k \cdot T_e / m_i)^{0.5} \quad (12)$$

ここで、 e : 電子の電荷量, n_e : 電子密度, k : ボルツマン定数, T_e : 電子温度, m_i : イオンの質量

図 10 において、イオン流束は RF 電力に対して比例して増加しており、値も熱流束とほぼ一致していることがわかる。

イオン流束の導出には電子温度などのプラズマパラメータと自己バイアスなどの電位に関する諸量が必要になる。図 11 に RF 電力と電子密度、温度、RF 電圧との関係を、図 12 に RF 電圧とプラズマ電位、自己バイアス電圧との関係を示す。図 11 より、RF 電力に対して電子密度はほぼ比例して増加しており、電子温度はわずかに減少していることがわかる。(12) 式において、電子密度と電子温度以外はすべて定数である。したがって、イオン流束は RF 電力に対して比例するが、イオン電流は電子温度が低下する分だけ小さくなる。しかし図 11、図 12 に示されるよう

図 12 RF 電圧に対する自己バイアス電圧
およびプラズマ電位

Fig. 12. DC self-bias voltage and plasma potential
versus RF voltage.

に、RF 電力に対して $V_s - V_T$ は増加するため、イオン流束はほぼ比例したと考えられる。また、図 12 より、自己バイアスは RF 電圧の約 85% となる。これらの値および傾向は Roosmalen らの報告⁽¹²⁾ や、Kohler らの報告⁽¹³⁾ とよく一致している。

6. む す び

複屈折によるレーザ干渉法で、RF 放電中の基板の温度上昇を測定した。この方法は非接触法でプラズマや基板表面の状態を乱さないことに加え、光の強度を用いないので光源の放射特性や窓の透過特性には影響されない。この新しい計測手段で基板の温度上昇を測定するとともに数値解析を行い、以下のような結果を得た。

(1) 実験結果の解析より、気圧 50 mTorr において、投入する RF 電力の約 0.4% 程度の熱流束がプラズマから基板に入っていることが分かった。

(2) 熱伝導方程式を使って基板温度の時間的・空間的变化を数値解析した。解析の結果、基板内の平均温度に対する測定温度の誤差は、本実験条件下では 1% 以内となることが分かった。

(3) 熱流束はプラズマパラメータを用いて計算したイオン流束とほぼ一致し、RF 電力の増加に比例して増加することが分かった。

最後に、本研究を遂行するにあたり、プローブ・データのパソコン処理では東北大学 加藤公義氏に、また装置製作では同大学 石田裕康氏、岩手大学 加藤昭二氏に御指導、御協力をいただいたことに深く感謝いたします。

(平成 8 年 12 月 19 日受付、同 9 年 7 月 3 日再受付)

文 献

- (1) R. J. Visser: "Determination of the power and current densities in argon and oxygen plasmas by in situ temperature measurements", *J. Vac. Sci. Technol.*, **A7**, 189 (1989)
- (2) J. J. Hannon & J. M. Cook: "Oxidative Removal of Photoresist by Oxygen/Freon 116 Discharge Products", *J.*

Electrochem. Soc., **131**, 1164 (1984)

- (3) I. Hussla, K. Enke, H. Grunwald, G. Lorenz & H. Stoll: "In situ silicon-wafer temperature measurements during RF argon-ion plasma etching via fluoroptic thermometry", *J. Phys. D: Appl. Phys.*, **20**, 889 (1987)
- (4) M. Ulrickson: "Surface thermography", *J. Vac. Sci. Technol.*, **A4**, 1805 (1986)
- (5) R. R. Manory: "A simple method for monitoring surface temperatures in plasma treatments", *ibid.*, **A4**, 2329 (1986)
- (6) R. A. Bond, S. Dzioba & H. M. Naguib: "Temperature measurements of glass substrates during plasma etching", *ibid.*, **18**, 335 (1981)
- (7) R. Rochotzki & M. Friedrich: "Temperature measurements of polymer substrates (PMMA) in an RF discharge", *IEE Proc.*, **A139**, 61 (1992)
- (8) T. Fujiwara & H. Yamada: "Temperature measurements of a birefringent substrate (LiNbO₃) in a radio frequency discharge by laser interferometry", *Rev. Sci. Instrum.*, **65**, 267 (1994)
- (9) T. Fujiwara, Muaffaq Achmad Jani, M. Itagaki, S. Kato & H. Yamada: "Temperature measurements of birefringent substrate in RF discharge by laser interferometry", *Proc. 12th Symp. on Plasma Processing*, Sendai, 253 (1995)
- (10) T. Taniuchi & Y. Tsujimoto: "Fiber-Optic Temperature Sensor", *National Tech. Report*, **29**, 23 (1983)
- (11) 川下: 熱伝導論, p. 21 (昭 50) 生産技術センター
- (12) A. J. van Roosmalen, W. G. M. van den Hoek & H. Kalter: "Electrical properties of planar rf discharges for dry etching", *J. Appl. Phys.*, **58**, No. 2, 653 (1985)
- (13) K. Kohler, J. W. Coburn, D. E. Home, E. Kay & J. H. Keller: "Plasma potentials of 13.56-MHz rf argon glow discharges in a planar system", *J. Appl. Phys.*, **57**, No. 1, 59 (1985)

高 木 浩 一 (正員) 1963 年 10 月 16 日生。1988 年 3 月熊本大学大学院修士課程修了。同年 4 月同博士課程入学。1989 年 4 月大分高専電気工学科助手、1993 年同校講師。1996 年 4 月岩手大学電気電子工学科助手、現在に至る。工学博士。日本物理学会、静電気学会会員。

佐 山 国 央 (学生員) 1972 年 7 月 13 日生。1995 年 3 月岩手大学工学部卒業。1997 年 3 月同大学大学院工学研究科修士課程修了。同年 4 月国際電気(株)入社、現在に至る。主として、高周波放電に関する研究に従事。

高 橋 淳 (学生員) 1974 年 8 月 21 日生。1997 年 3 月岩手大学工学部卒業。同年 4 月同大学大学院工学研究科修士課程入学、現在に至る。主として、高周波放電に関する研究に従事。

藤原 民也 (正員) 1947年4月17日生。1971年3月東北

大学工学部電気工学科卒業。1973年3月同大学大学院工学研究科修士課程修了。同年4月一関高等専門学校電気工学科助手。1975年4月岩手大学電気電子工学科助手、講師、助教授を経て、1994年2月同教授、現在に至る。1987年3月～1988年3月マサチューセッツ工科大学客員研究員。工学博士。主として、気体放電に関する研究に従事。応用物理学会、プラズマ・核融合学会、電気設備学会会員。

永田 雅克 (正員) 1965年1月4日生。1988年3月東京理科大学理工学部物理学科卒業。同年4月(株)フジクラに入社、現在に至る。固体電解質型燃料電池の研究開発に従事。

小野 幹幸 (正員) 1940年10月27日生。1966年3月九州

大学大学院工学研究科電気工学専攻修士課程修了。同年4月藤倉電線(株)〔現、(株)フジクラ〕入社。以来、主として電力ケーブルの絶縁測定技術、超高圧架橋ポリエチレン電力ケーブルの研究開発に従事。現在、同社知的財産部長。工学博士。1992年度渋沢賞、1996年度電気学会学術振興賞(進歩賞)受賞。IEEE 会員。

Muaffaq Achmad Jani (非会員) 1965年12月8日生。1990年

スラバヤ工業大学(インドネシア)卒業。同年4月PT. Boma Bisma Indra(インドネシア国有企業体)入社。1993年4月岩手大学大学院工学研究科修士課程入学。1995年3月同修了。同年4月PT. Boma Bisma Indra 復職。1997年4月岩手大学大学院工学研究科博士後期課程入学、現在に至る。主として、気体放電に関する研究に従事。