超高真空仕様表面波励起高密度
プラズマ発生装置の評価*伴 野 達 也^{*1}

(受理2003年11月14日, 掲載決定2004年2月14日)

UHV-Compatible Apparatus for the High-Density
Plasma Induced by Surface Wave ModesTatsuya BANNO^{*1}^{*1}Department of Applied Physics, University of Tokyo
Hongo 7-3-1, Bunkyo-ku J-113-8656 Tokyo, Japan

(Received November 14, 2003, Accepted February 14, 2004)

A microwave launcher with a ring slot has been designed, allowing a UHV viewing port to be utilized as a dielectric material in order to induce high-density plasma with the surface wave mode in a UHV compatible chamber. Electrostatic probe measurements on the plasma show that the plasma density distribution results from an intensive ionization rate in the vicinity of the dielectric/plasma interface and from the ambipolar diffusion. When nitrogen is mixed to argon gas, the plasma density remains almost constant as a result of the discrete surface mode, whereas the atomic nitrogen density varies in proportion to the nitrogen partial pressure.

1. はじめに

マイクロ波が誘電体を介してプラズマと相互作用する際に、表面波モードとなり、カットオフ密度を超える高密度プラズマが発生することがよく研究されてきている¹⁾。定常外部磁場が不要で、容易に大面積化も行なえて、高プラズマ密度はイオンのみならずラジカル密度も高いであろうから、例えば高速プロセッシングに応用できると期待される。一方プロセッシングの高清浄化の必要性が唱えられており、とりわけ磁性体薄膜の記憶媒体応用のためには、酸化層の形成に関して放電容器の酸素分圧・酸素原子密度の制御が必要であることが報告された²⁾。10⁻⁷ Pa 相当の酸素ガスを有意に制御するには、到達圧を10⁻⁸ Pa 以下にすることが必要であろうし、そのためには充分に脱ガスできる材質のみで組み上げた放

電容器を用いる必要がある。表面波プラズマの実験装置はマイクロ波の導入部に石英等の誘電体を真空封じにも兼用していることが多く、O-リングをエラストマーとして用いているので、こういった極高真空には対応していない。そこで最大口径を持った市販のパイレクスガラス製ビューポートフランジをマイクロ波導入部に利用できないかを検討することにした。

次に2.45 GHzのマイクロ波にとってはカットオフ密度を越えるような高密度の無電極放電プラズマをプローブ計測する際に、たとえば電子電流を飽和領域で引き出すことは、正味に大きな電流をプラズマから引き出すことになる。プローブが引き出した分の電流を、直流的には絶縁体であるパイレクスガラス等の誘電体に接しているプラズマに定常的に補う機構があるとは思えない。本質的には測定系が浮遊しているダブルプローブが採用されるべきであるが、ダブルプローブは電子エネルギー分布関数を算出する目的の手段ではないし、よく知られているように原理的にもっぱら電子エネルギー分布関数の

* 平成15年11月14日 第44回真空に関する連合講演会にて発表

^{*1} 東京大学大学院工学系研究科物理工学専攻 (〒113-8656 文京区本郷7-3-1)

高エネルギー尾部の情報に影響されやすいとされている³⁾。ここでは極めて面積の小さい円筒電極とその約100倍の面積をもつ円板電極を用いて非対称ダブルプローブとして採用することにし、実質的に後者を参照電極、円筒電極を単短針とみなして解析できるかどうかを検討することにした。

マイクロ波がプラズマと結合する際に表面波モードが発生することが高密度プラズマを維持するために必要条件であるが、逆に表面波電場があれば高密度プラズマとなるか明確ではない。発光強度の目視観察でもプラズマの誘電体との界面付近が最も強く発光しているため、プラズマ密度も界面付近が最大になっていると思われるが、これを古典的な両極性拡散モデルで解析すること試みてみる。

2. 実 験

表面波プラズマを発生させるためには、マイクロ波導波管の底板に切り込みを設け、それを一種の方向性結合器のスロットと見立てたランチャーが一般的に使用されている。しかし本研究で用いることにした広視野角のいわゆるゼロレングス仕様のヴェーポート(ICF203:アールデック社ZPV-600)はフランジを固定するためのネジ頭がフランジ面よりも外に出るため、このスロットとパイレクスガラス面を密着することはできず、12 mm程度の隙間が生じ、マイクロ波の電力損失の原因になりえる。またガラス面の直径の方が規格のWRJ-2導波管の幅よりも長く、反射マイクロ波の漏れが懸念されるし、スロット部付近以外のガラス面が電力の伝達に関係しないのなら、大きな面積のパイレクスガラスが有効に利用できるとは言えない。そこでテーパ管を製作して導波管の幅を広くして、岡本キャビティと呼ばれるリングスロット方式⁴⁾のランチャーに接合し、そのリングスロットとガラス面との間には中心部分のない同軸円筒状の短管をキャビティと一体で製作して取り付けた。Fig. 1に放電容器とマイクロ波ランチャーの付近の模式的断面図を示す。放電容器はステンレス鋼製で、内径18 cm長さ35 cmの円筒状真空容器であり、400℃のベキングが可能である。

10^{-6} Paまでターボ分子ポンプで排気した後、アルゴンおよび窒素ガスを独立の導入系から0から10 sccm程度で定常的に導入し、主排気バルブを全閉し、全圧が100 Paになったところで300 W程度のマイクロ波を供給し、放電が開始した後に全圧をたとえば5 Paに維持するように主排気バルブを開いた。

非対称ダブルプローブの電極部はタンタル製であり、2組用意し、それぞれ直線導入器に取り付けられて、放

Fig. 1 Schematic description of a part of the experimental apparatus.

電容器の円筒中心軸方向(z軸方向)と半径方向(r方向, $z = 10$ cm固定)に移動できる。電極間にはKeithley社製ソースメジャーユニットKE236と結線してバイアス電圧(−20から+20 V程度)をかけた。データ解析に際しては、微小面積の電極を単短針とみなして、測定した電流電圧特性からプラズマパラメータと電子エネルギー分布関数をそれぞれ空間座標の関数として求めることにした。

プラズマ中の生成粒子の計測手段としては発光分光計測法と、円筒壁の位置に置いたミニチュア質量分析計⁵⁾を用いた。

3. 結果および考察

放電開始した圧力においては目視観察で、このパイレクスガラスの内側に表面波モードを特徴づける6回対称の発光パターンが見られた。設定圧力まで下げると平均自由行程が長くなり、一様な発光パターンに変化した。

Fig. 2にはプローブ計測結果の一例として窒素ガスのみ6.6 Pa、マイクロ波出力400 Wで得られた電子密度の空間分布を示した。軸方向にはパイレクスガラスのプラズマ側の端面($z = 0$)から $z = 3$ cmの位置に最大密度が得られている。密度がカットオフ密度を越えていないので、完全な表面波モードではなく、ハイブリッド表面波モード¹⁾になっている。半径方向の一様性は容器円筒半径が小さいために、壁の影響が出ていると思われる、0次のベッセル関数的である。

プローブ計測から求められたエネルギー分布関数 $f(E)$ に基づいてイオン生成レート Q を

$$Q = \int n_g n_e v_e \sigma_i(E) f(E) dE \quad (1)$$

(ガス分子密度 n_g 、電子の速度 v_e 、イオン化断面積 $\sigma_i(E)$)を用いて算出し、その空間分布をFig. 3に示した。イオンはもっぱら誘電体との界面付近で発生し、界

Fig. 2 Spatial distribution of the plasma density in nitrogen gas at 6.6 Pa.

Fig. 3 Spatial distribution of the ionization rate.

面からの距離に指数関数的に減少している。

このイオン生成レートの分布 $Q(r, z)$ を元にプラズマが古典的な両極性拡散則に従っているとすると、プラズマ密度 n_e は、両極性拡散定数を D_a として

$$\frac{\partial n_e}{\partial t} = D_a \nabla^2 n_e + Q \quad (2)$$

と記述される。容器壁面上でプラズマ密度が 0 になることを境界条件とする。さらに Q には n_e とエネルギー分布関数の両方が (1) 式のように入るため、自己無撞着には (2) 式が解けなくなるが、Fig. 3 の結果にうまくフィッティングできる関数として

$$Q(r, z) = Q_0 J_0(kr) \exp(-\gamma z), \quad (k=0.267) \quad (3)$$

と書けるものと仮定した。この定常解を求めて、 D_a と Q_0 と γ をフィッティングパラメータとして、Fig. 2, Fig

3 にフィットさせることを試みたところ、 $\gamma = 0.7 \text{ cm}^{-1}$, $Q_0 = 5 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3} \text{ s}^{-1}$, $D_a = 2 \times 10^6 \text{ cm}^2 \text{ s}^{-1}$ という値が求められた。窒素分子などの中性粒子のこの圧力における拡散定数 D が $10^4 \text{ cm}^2 \text{ s}^{-1}$ のオーダーであり⁶⁾、2 桁大きい。この場合無磁場なので電子の移動度がイオンの移動度に比べて充分大きい場合の両極性拡散定数の表式

$$D_a \approx D(1 + T_e/T_i) \quad (4)$$

が適用できる。電子温度がイオン温度よりも 2 桁大きいことは容易に考えられるので、矛盾するものではない。またハイブリッド表面波モードの場合の電場のプラズマへの浸入長がちょうど γ の逆数となり、電場の遮蔽効果を表わしている。

他方、イオン生成レートだけでなく、分子の励起レートや中性ラジカル生成レートも算出可能となる。ただしイオンの場合と異なり、中性粒子の拡散は通常の D の値の程度であるので、まさに γ の逆数の程度の領域に関わるだけで、表面波モード励起を特徴づけている強い発光が誘電体との界面付近に局在化することが説明できる。よって表面波モードが生じている際には、誘電体との界面付近でプラズマ粒子が高いレートで生成され、プラズマの最大密度は界面ではなく、両極性拡散により界面から離れた位置で得られ、電場は遮蔽される。つまり界面付近で高効率にイオンと電子を生成することが本質であり、それによってカットオフ密度を越えることが可能となると考えられる。

次にマイクロ波電力を 300 W に保ち、アルゴンの流量を 2 sccm に設定し、窒素ガスの流量を変化させて、分圧比を 30 : 1 から 1 : 1 の範囲で変化させ、発光スペクトル中の Ar , Ar^+ , N_2^+ , N^+ (波長はそれぞれ 420.1, 433.1, 391.2, 374.8 nm) の強度を測定した結果を Fig. 4 に示す。同図右軸では電子密度の値を表しており、全圧が約 2 倍変化しているにも関わらずプラズマ密度はほとんど一定である。これは表面波が離散的なモードではなく、この場合もある一つのモードにロックしていたと理解される。しかるに窒素の発光強度は窒素分圧に対して連続的に増加している。これはモードロックを利用して、ガスの混合比を選択することでラジカル密度やフラックス強度を自由に变化・設定させることが可能となることを示している。高周波放電や電子サイクロトロン共鳴プラズマなどでは、全圧、混合比、供給電力を独立に設定しなければプラズマ密度、ラジカル密度を制御することができないので、表面波プラズマの技術的利点の一つとなる。

この実験で発光強度と同時に $z = 10 \text{ cm}$, $r = 0 \text{ cm}$ で測定した電子エネルギー分布関数を窒素分圧をパラメータにして Fig. 5 に示す。窒素分圧が高くなると 5 eV 以上

Fig. 4 Optical emission intensities from the plasma and the plasma density in Ar and N₂ gas as functions of nitrogen partial pressure.

Fig. 5 Electron energy distribution function with the nitrogen partial pressure as a parameter.

の高エネルギー側の電子は減り、低エネルギー側の電子は増えている。この測定位置よりも誘電体側で高エネルギーの電子が窒素の解離やイオン化に寄与してエネルギーを失い、低エネルギーになって両極性拡散した結果

であると考えられる。

4. 結 論

超高真空対応のパイレクスビューポートを活用し、リングスロット方式のマイクロ波ランチャーを用いてハイブリッドモード表面波による高密度プラズマを発生維持できた。材料プロセスのみならず、表面科学等で使用される超高真空容器でも内部に電極を設けることなくプラズマを発生できることを示しており、たとえば *in situ* でシリコン表面の水素終端や、酸化被膜作成が可能となるなどの応用も考えられよう。供給電力がまだ小さいため、ハイブリッド表面波モードになる密度になっていた。プラズマから正味の電流を取り出さないプローブ計測法を提唱し、そのプローブ計測で得られたプラズマ密度の空間分布は、誘電体との界面付近に局在分布するイオン生成が両極性拡散の結果と解釈された。またラジカルを利用するプロセスには、界面付近に基板等をセットするか、界面から離れたところに於いてもまだ充分高密度である電子を利用して、高周波バイアスなどを印可するなどの工夫が必要となろう。

謝辞

リングスロットランチャーの設計に際して東洋大学教授岡本幸雄先生から多大な助言をいただいた。本研究は文部科学省の科研費(13680552)の助成を得た。

〔文 献〕

- 1) H. Sugai, I. Ghanashev and M. Nagatsu: Plasma Sources Sci. Technol., 7 (1998) 192.
- 2) M. Takahashi, M. Tsunoda and H. Shoji: Vacuum, 59 (2000) 814.
- 3) F. F. Chen: "Plasma Diagnostic Techniques" (R. H. Huddleston and S. L. Leonard) (Academic, New York, 1965) Chap4.
- 4) T. Ohgushi, T. Okamoto, S. Watanabe and Y. Okamoto, Appl. Surf. Sci., 169-170 (2001) 593.
- 5) T. Banno, S. Michizono and Y. Saito: Appl. Surf. Sci., 169-170 (2001) 759.
- 6) A. Roth: "Vacuum Technology" (North-Holland, Amsterdam, 1976).