

## 科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成 25 年 5 月 19 日現在

研究種目：基盤研究（C）

研究期間：2010～2012

課題番号：22540500

 研究課題名（和文） 低気圧高密度磁気中性線環状放電  
プロセスプラズマのモデリングと動的制御特性解析

 研究課題名（英文） Modeling of low-pressure high-density  
magnetic neutral loop discharge processing  
plasmas and analysis of their dynamic control

研究代表者

菅原 広剛（SUGAWARA HIROTAKE）

北海道大学・大学院情報科学研究科・准教授

研究者番号：90241356

研究成果の概要（和文）：半導体集積回路微細加工用の磁界下環状放電プラズマの計算機解析を行った。環状放電部から伸びる分界線（磁力線の流れが変わる境界）沿いに高エネルギー電子が輸送され、ガスを分解して化学活性種を生成することを解明した。半導体基板では分界線の到達点に多く化学活性種が入射することを再現し、過去の実験結果を説明した。磁界を変化させ分界線を動かすことで基板上の広い面積を均一に表面処理する技法を提案した。

研究成果の概要（英文）：Computer simulations of magnetic neutral loop discharge plasmas used for surface processing in fabrication of semiconductor integrated circuits have been performed. It was revealed that high-energy electrons were transported along the separatrix of the magnetic field and generated reactive species there by dissociation of the medium gas. The flux of the reactive species on the semiconductor substrate was high at the foot of separatrix. This result explained early experimental data well. A control scheme for uniform wide-area processing by moving the foot of separatrix over the substrate was proposed.

交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
2010年度	1,100,000	330,000	1,430,000
2011年度	900,000	270,000	1,170,000
2012年度	700,000	210,000	910,000
年度			
年度			
総計	2,700,000	810,000	3,510,000

研究分野：数物系科学

科研費の分科・細目：プラズマ科学・プラズマ科学

 キーワード：磁化プラズマ、計算機解析、分界線、電子輸送、化学活性種、  
磁界制御、大面積均一処理

## 1. 研究開始当初の背景

半導体集積回路の高集積化のためプロセス微細化への要求が高まっており、研究代表者は異方性エッチングに適した低気圧高密度を特長とする誘導結合型磁化プラズマの一種、磁気中性環状放電 (Neutral Loop Discharge: NLD) プラズマに注目した。NLD プラズマは、同軸3重コイルで作る4極磁界と呼ばれる特殊な形状の磁界の下で駆動される。磁界内部に磁界ゼロの中性環 (Neutral Loop: NL) が設けられており、NLに沿って環状のプラズマが生じるものである (図1)。

NLは磁界に応じて半径や位置が変わるため、磁界を作るコイル電流を介してNLDプラズマの半径や位置も制御可能であることが知られていた。しかし、NLDプラズマはNL付近に集中しているため、ここで生成された化学活性種が半導体基板に輸送されプロセスに寄与するに当たり、基板面におけるプロセスの不均一性が敬遠されていた。環状プラズマの半径を動的に制御することで、化学活性種の基板への入射量を均一化できるとの実験結果が得られていたが、プラズマ維持機構、化学活性種の生成領域、輸送過程、入射位置を決める要因、磁界制御指針などの詳細は未解明であった。

研究代表者は、磁界下の電子運動に関する予備的計算機解析により、プラズマ中の化学活性種の生成・輸送や基板面上の入射位置を決める要因の一つが磁界の分界線 (磁力線の流れが変わる境界) であるとの洞察を得ていた。この点を踏まえ、分界線が基板面上を掃引するように磁界を制御し、化学活性種の入射量に応じた時間的加重を加えることが大面積均一処理の基本方略となると考えた点が本研究の中心的着想であった。

## 2. 研究の目的

本研究は、NLDプラズマが不均一ながらも高密度で高速処理に適する点を活かすため、NLDプラズマの構造と応答特性を解析し、NLDプラズマの動的制御により半導体集積回路微細加工プロセスの大面積化・均一化を実現するための指針を得ることを目的とした。

プラズマ構造・応答特性を、電子、イオン、ラジカルの微視的運動から理解し、これに基づく制御指針の提案を目指した。また、NLDプラズマの維持に重要なエネルギー投入過程を解析するため、不均一磁界下の電子伝導基礎過程を解析することも課題とした。

## 3. 研究の方法

NLDプラズマの構造と応答特性をシミュレーションにより再現するため、次の手順で解析を行った。

### (1) 4極磁界下の電子運動の解析

NLDプラズマ装置内空間に対応する軸対称

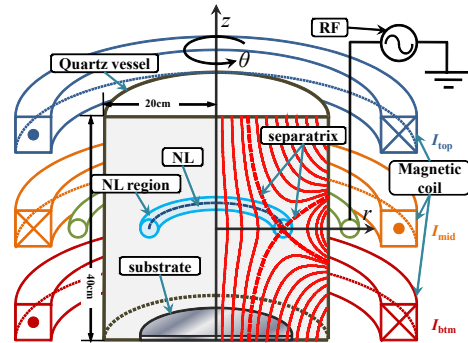


図1. NLDプラズマ装置模式図  
(発表論文等、雑誌論文[3])

3次元円筒座標系で電磁界 (ラジオ周波数 (RF) 13.56MHz交流電界および4極静磁界) を計算し、結果を電子運動追跡用モンテカルロ法プログラムに与えて電子運動を再現した。単電子運動の観察から、4極磁界・交流電界下の電子の特徴的運動を識別した。

また、NLを直線状に展開しその周囲の磁界を模した理想的な4極磁界および反平行傾斜磁界を設定し、交流電界下の電子運動の解析により電子伝導路の構造を解明した。

### (2) NLDプラズマの構造と応答の解析

上記の計算プログラムにより多数の電子を追跡し、電子空間分布、電子-気体分子衝突データ、エネルギー利得・消費位置分布を得た。これらの情報から、NLDプラズマへのエネルギー投入位置やエネルギー輸送経路を確かめた。また、磁界に依存してプラズマ形状が変わる様子を観察し、プラズマ制御のための基礎情報を得た。

### (3) エッチングに用いられる化学活性種 (イオン、ラジカル) の生成と輸送の解析

電子衝突位置分布の情報から、イオン、ラジカルの生成位置についての知見を得た。電子追跡のプログラムを化学活性種追跡用に改造し、化学活性種の輸送経路と基板面上の入射位置分布の情報を得た。制御パラメータに対する依存性の検討例として、化学活性種生成量ならびにプラズマ構造の気圧依存性を解析した。

## 4. 研究成果

研究方法の手順(1)~(3)に述べた解析により、次の成果を得た。

(1)の4極磁界下の電子運動の解析では、まず要素運動として、NL近傍弱磁界下の蛇行運動、NLから離れた強磁界下の磁力線の周りの旋回運動、磁力線に沿った往復運動 (磁気ミラー効果や境界での反射による往復)、NLに沿った周回運動 (Bドリフト) が識別された。(発表論文等、雑誌論文[2]、[7]、[8])

電子伝導路の構造解析では、電磁界配位に応じて決まる電子流の整流性が見出された。

電子伝導路は、順方向と逆方向に指向性を持つ5つの層が交互に並ぶ構造となっていた。4極磁界では上下方向と左右方向に逆向きに並ぶ2組の5層構造が互いに交差する構造となっていた。実験的に観察されていたNLDプラズマ発光の位相応答特性の非対称性が、NL沿いの周回運動における整流性の発現である可能性が指摘された。(発表論文等、雑誌論文[5]、[6])

また、交流電界の周波数が高いほど、磁界強度が共鳴磁界強度以下の範囲が広がるため電子が電界に追従して加速が起こり易いことを示した。高周波電界ほど電子へのエネルギー供給が容易となりNLDプラズマの維持に寄与する可能性が指摘された。(発表論文等、雑誌論文[2])

更に、それまで説明がなされていなかった4極磁界の電子閉じ込め効果が、電子の衝突散乱に伴い生じる統計的・確率論的な過程と考えられることが指摘された。勾配のある不均一な磁界中の電子の旋回運動において、弱磁界下では旋回半径が大きく滞在時間も長い。逆に強磁界下では旋回半径が小さく滞在時間が短い。衝突散乱により旋回軌道が変わり旋回中心が変位する際、滞在時間が長い弱磁界側に移りやすいためであると説明された。(発表論文等、雑誌論文[1]、図2)

(2)のNLDプラズマの構造解析では、磁界の支配が強い場合にNLの内側に電子空間分布のピークが観察された。ピーク位置のNLからのずれは実験で観測されていたが理由が不明であった。本研究により次の説明がなされた。NL近傍の電子加速で蛇行運動が激しくなると電子は強磁界領域に逸れる。そこで磁力線に捉えられ旋回運動・往復運動に入り、それ以上の拡散は起こり難くなる。その結果、境界の影響が少ないNLの内側にピークができる。(発表論文等、雑誌論文[5]、[7]、[9])

電子のエネルギー収支のデータから、NL近傍で電子にエネルギーが与えられ、NLがNLDプラズマへのエネルギー供給口となっていることが確かめられた。(発表論文等、雑誌論文[2]、[5])

高エネルギー電子はNL近傍から伸びる分界線(separatrix、4極磁界をなす磁力線の流れが変わる境目)に沿って輸送され、イオンを生成する電離衝突やラジカルを生成する解離衝突(共に電子エネルギーが高いときに起こる)は分界線沿いの領域で起こった。NL近傍での電子加速後、一旦NLから逸れた高エネルギー電子は周囲の磁力線に捉えられるが、その磁力線が分界線に集まることから最終的に高エネルギー電子は分界線に導かれることとなるものであった。化学活性種生成がNL近傍だけでなく分界線沿いに広がりを持つことが見出された。この点は、NL制御の際に分界線に注目すべきことを示してお

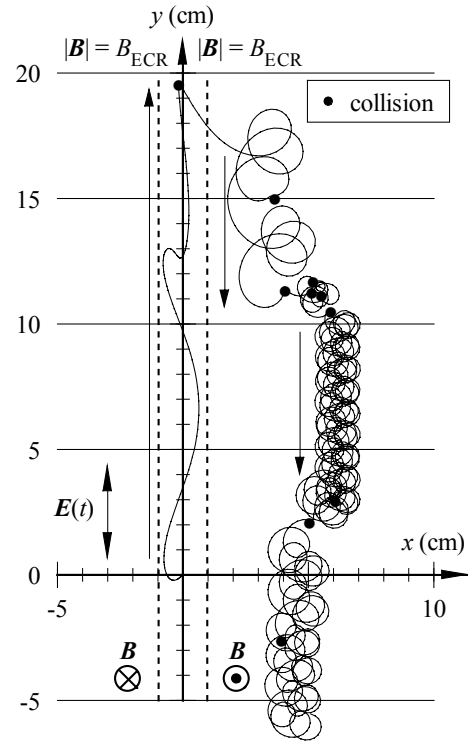


図2. 反平行傾斜磁界中の電子運動 (発表論文等、雑誌論文[1])

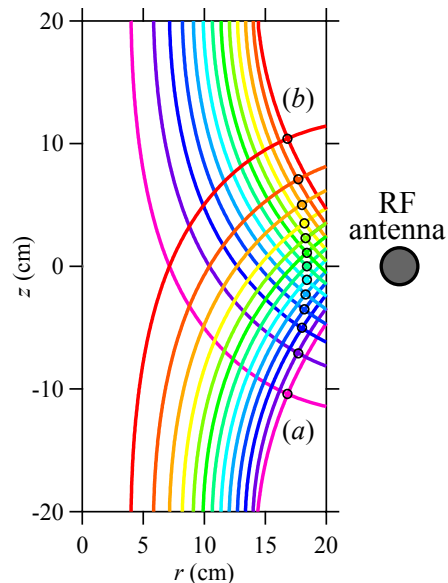


図3. NLをRFアンテナ付側壁沿いに推移させたときの分界線の変化 (発表論文等、雑誌論文[3])

り、今後の制御指針検討の際の重要な知見となった。(発表論文等、雑誌論文[3]、[9])

(3)の化学活性種の生成と輸送では、それまでのNL径を伸縮させる制御法(上下段コイル電流は固定、中段コイル電流を増減)に代わって、NLがプラズマ容器側壁沿いに上下

するような磁界制御法（中段コイル電流は固定、上下段コイル電流を相補的に増減）を提案した。側壁の外には誘導電界を作るためのRFアンテナがあり、NLが常にその近くにあることで電力供給の要をなす磁気結合を密に保つことができた。この制御は同時に、分界線の足（プラズマ容器底部に置いた基板上への到達位置）が基板面上を掃引するようにしたものであった。基板面上の化学活性種入射量を算出し、入射時間の重み付けをしつつ入射位置を変化させる手法を提案し、この制御により実用的基板寸法をカバーする広い範囲でイオン入射量を均一化できることを示した。（発表論文等、雑誌論文[3]、図3、4）

気圧依存性の解析では、気圧にほぼ比例して化学活性種生成量も増えることが観察された。高速処理への応用が期待される一方、換算磁界（磁界強度÷気体分子数密度）の低下に伴い磁界の支配力が弱まるため、NLDプラズマの特長を保ちつつ運転できるのは数十mTorr（従来の気圧条件の10倍程度）までであろうと推測された。

## 5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕(計9件)

- [1] H. Sugawara, Scattering-Based Stochastic Process Attracting Electrons Inward under Antiparallel Gradient Magnetic Fields, J. Phys. Soc. Japan., 査読有, Vol. 82, No. 6, pp. 064501-1 - 064501-6 (2013)
- [2] H. Sugawara, Characteristics of Electron Conduction in a Gas under a Quadrupole Magnetic Field and Radio-Frequency Electric Fields, Japan. J. Appl. Phys., 査読有, Vol. 52, No. 5, pp. 056101-1 - 056101-5 (2013)
- [3] 吉田拓平、櫻井洋平、菅原広剛、村山明宏、NLDプラズマ中のイオン生成維持および基板へのイオン入射量均一化のための磁界制御、電気学会論文誌(特集「プロセスプラズマの発生と応用」)、査読有、Vol. 132-A, No. 4, pp. 278-283 (2012) (Electrical Eng. in Japan誌英訳転載決定、Control of Magnetic Field for Sustainment of Ion Production and Uniform Ion Flux to Substrate in Neutral Loop Discharge Plasma)
- [4] 菅原広剛、モンテカルロシミュレーションによるNLDプラズマの解析、講座「原子分子データベースの構築と利用」(分担執筆) 1.2 データベースの活用研究例 e)

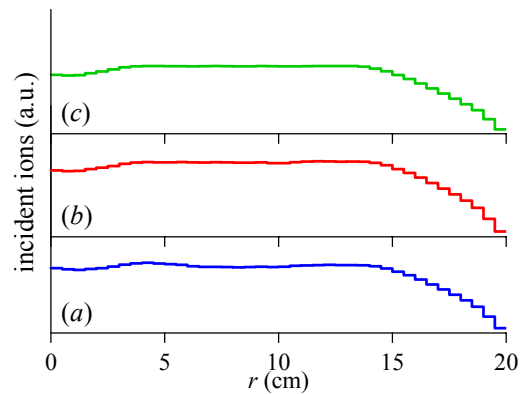


図4. プラズマ容器底部(基板)への入射イオン束分布 (a)半径0~15cmの範囲を均一化、 $\beta/m=2.7\%$ 、(b)同5~15cm、 $1.1\%$ 、(c)4~14cm、 $0.25\%$  (発表論文等、雑誌論文[3])

プロセスプラズマ、プラズマ・核融合学会誌、査読なし、Vol. 88, No. 1, pp. 43-44 (2012)

- [5] T. Osaga, H. Sugawara and Y. Sakurai, Structure and dynamics of a magnetic neutral loop discharge plasma described using electron motion in quadrupole magnetic field, Plasma Sources Sci. Technol. 査読有, Vol. 20, No. 6, pp. 065003-1 - 065003-7 (2011)  
機関リポジトリ:  
<http://eprints.lib.hokudai.ac.jp/dspace/handle/2115/48133>
- [6] H. Sugawara, T. Osaga and H. Yamamoto, Rectification effect of gradient antiparallel magnetic fields on electron conduction in a gas under a radio-frequency electric field, Plasma Sources Sci. Technol., 査読有, Vol. 20, No. 5, pp. 055002-1 - 055002-7 (2011)  
機関リポジトリ:  
<http://eprints.lib.hokudai.ac.jp/dspace/handle/2115/50049>
- [7] T. Osaga, Y. Sakurai and H. Sugawara, Electron Distribution in a Quadrupole Magnetic Field to Drive Magnetic Neutral Loop Discharge Plasma, IEEE Trans. Plasma Sci., 査読有, Vol. 39, No. 11, Pt. 1 (6th Triennial Special Issue of "Images in Plasma Science"), pp. 2546-2547 (2011)  
機関リポジトリ:  
<http://eprints.lib.hokudai.ac.jp/dspace/handle/2115/48517>
- [8] Y. Sakurai, T. Osaga and H. Sugawara,

Control of Magnetic Field in Neutral Loop Discharge Plasma for Uniform Distribution of Ion Flux on Substrate, IEEE Trans. Plasma Sci., 査読有, Vol. 39, No. 11, Pt. 1 (6th Triennial Special Issue of "Images in Plasma Science"), pp. 2550-2551 (2011)

機関リポジトリ:

<http://eprints.lib.hokudai.ac.jp/dspace/handle/e/2115/48516>

- [9] H. Sugawara, T. Osaga, H. Tsuboi, K. Kuwahara and S. Ogata, Numerical simulation of electron transport in electric and magnetic fields for analysis of electron temperature and number density profiles measured in an argon magnetic neutral loop discharge plasma, Japan. J. Appl. Phys., 査読有, Vol. 49, No. 8, pp. 086001-1 - 086001-5 (2010)

機関リポジトリ:

<http://eprints.lib.hokudai.ac.jp/dspace/handle/2115/44420>

[学会発表](計27件)

- [1] 浅見勇介(発表者)、吉田拓平、菅原広剛、村山明宏:NLDプラズマの解析(XXV) - ラジカル生成位置分布に及ぼす空間電荷電界の効果 -、平成25年電気学会全国大会No.1-031 (vol.1, p.45)、2013年3月20日、名古屋大学東山キャンパス

- [2] 浅見勇介(発表者)、吉田拓平、菅原広剛、村山明宏:NLDプラズマの解析(XXIV) - エッチャントラジカル基板入射量の気圧依存性 -、平成24年度電気・情報関係学会北海道支部連合大会No.72、2012年10月20日、北海道大学札幌キャンパス

- [3] 吉田拓平(発表者)、菅原広剛、村山明宏:NLDプラズマの解析(XXIII) - 基板バイアス印加時の電位分布への影響 -、平成24年度電気・情報関係学会北海道支部連合大会No.71、2012年10月20日、北海道大学札幌キャンパス

- [4] 菅原広剛(発表者): NLDプラズマの解析(XXII) - 4極磁界・交流電界下の電子伝導 -、平成23年電気学会基礎・材料・共通部門大会No.XIV-4、2012年9月21日、秋田大学手形キャンパス

- [5] 浅見勇介(発表者)、吉田拓平、菅原広剛:NLDプラズマの解析(XXI) - エッチャントラジカル生成分布の気圧依存性 -、平

成23年電気学会基礎・材料・共通部門大会No.XVII-5、2012年9月21日、秋田大学手形キャンパス

- [6] H. Sugawara (発表者): Stochastic scattering process to induce inward electron flow in electron conduction path between antiparallel gradient magnetic fields, XXI Europhysics Conf. on Atomic and Molecular Physics of Ionized Gases, No. P1.2.5 (査読有), Jul/10-14, 2012, Castelo de Santiago da Barra, Viana do Castelo, Portugal

- [7] 吉田拓平(発表者)、櫻井洋平、菅原広剛、村山明宏:NLDプラズマの解析(XX) - イオン輸送における空間電荷電界の効果 -、平成24年電気学会全国大会No.1-184 (vol.1, p.213)、2012年3月23日、広島工業大学五日市キャンパス

- [8] 浅見勇介(発表者)、櫻井洋平、菅原広剛、村山明宏:CF<sub>4</sub> NLDプラズマ構造の気圧依存性、第47回応用物理学会北海道支部/第8回日本光学会北海道地区合同学術講演会B-9、2012年1月6日、北海道大学札幌キャンパス

- [9] 山本寛容(発表者)、菅原広剛、村山明宏:NLDプラズマの解析(XIX) - 4極磁界・RF電界下の分界線に沿った電子分布 -、平成23年度電気・情報関係学会北海道支部連合大会No.83、2011年10月23日、はこだて未来大学

- [10] 櫻井洋平(発表者)、吉田拓平、菅原広剛、村山明宏:NLDプラズマの解析(XVIII) - プラズマ維持への空間電位の寄与 -、平成23年度電気・情報関係学会北海道支部連合大会No.82、2011年10月23日、はこだて未来大学

- [11] 吉田拓平(発表者)、櫻井洋平、菅原広剛、村山明宏:NLDプラズマの解析(XVII) - 分界線制御時のイオン生成解析 -、平成23年度電気・情報関係学会北海道支部連合大会No.81、2011年10月23日、はこだて未来大学

- [12] 山本寛容(発表者)、菅原広剛、村山明宏:NLDプラズマの解析(XIV) - 2極/4極反平行傾斜磁界・RF電界下の電子挙動 -、平成23年電気学会基礎・材料・共通部門大会No.XVII-9、2011年9月22日、東京工業大学大岡山キャンパス

- [13] 櫻井洋平(発表者)、吉田拓平、菅原広

- 剛、村山明宏：NLDプラズマの解析(XVI) - プラズマ維持機構のモデリング -、平成23年電気学会基礎・材料・共通部門大会No.XI-11、2011年9月22日、東京工業大学大岡山キャンパス
- [14] 吉田拓平(発表者)、櫻井洋平、菅原広剛、村山明宏：NLDプラズマの解析(XV) - 分界線制御時のイオン生成と基板射突量均一化の評価 -、平成23年電気学会基礎・材料・共通部門大会No.XI-10、2011年9月22日、東京工業大学大岡山キャンパス
- [15] H. Sugawara(発表者)：Monte Carlo simulation of electron transport under quadrupole magnetic field and radio-frequency electric field, 30th Int. Conf. Phenomena in Ionized Gases, No. A2-3 (4 pages) (査読有), Aug/28-Sep/2 2011, Queen's University Belfast, Belfast, Northern Ireland, UK
- [16] H. Sugawara(発表者)：Electron conduction under the rectification effect of antiparallel magnetic fields, XVI Int. Workshop on Low Energy Positron and Positronium Physics & XVII Int. Symp. Electron-Molecule Collisions and Swarms (招待講演), Jul/22-25, 2011, National University of Ireland Maynooth, Maynooth, Ireland
- [17] 櫻井洋平(発表者)、大佐賀毅、吉田拓平、菅原広剛、村山明宏：NLDプラズマの解析(XIII) - 空間電荷ポテンシャルの影響 -、平成23年電気学会全国大会No.1-215 (vol.1, p.257)、2011年3月18日、大阪大学豊中キャンパス
- [18] 吉田拓平(発表者)、櫻井洋平、大佐賀毅、菅原広剛、村山明宏：NLDプラズマの解析(XII) - 分界線制御時のカップリング維持 -、平成23年電気学会全国大会 No. 1-214 (vol. 1, p. 256)、2011年3月18日、大阪大学豊中キャンパス
- [19] 菅原広剛(発表者)、山本寛容、大佐賀毅：NLDプラズマの解析(XI) - RF電界・反平行傾斜磁界下の電子束整流性 -、平成23年電気学会全国大会No.1-213 (vol.1, p.255)、2011年3月18日、大阪大学豊中キャンパス
- [20] 吉田拓平(発表者)、櫻井洋平、大佐賀毅、菅原広剛、村山明宏：NLDプラズマによる大面積均一材料プロセスのための磁界制御、第46回応用物理学会北海道支部第7回日本光学会北海道地区合同学術講演会C-7、2011年1月7日、室蘭工業大学
- [21] 山本寛容(発表者)、菅原広剛、村山明宏：モンテカルロシミュレーションによる二極反平行傾斜磁界・交流電界下低気圧CF<sub>4</sub>中の電子挙動の解析、第46回応用物理学会北海道支部第7回日本光学会北海道地区合同学術講演会C-6、2011年1月7日、室蘭工業大学
- [22] 大佐賀毅(発表者)、菅原広剛、櫻井洋平、村山明宏：NLDプラズマの解析(X) - 気相と壁面における電子衝突の磁界強度依存性 -、平成22年度電気・情報関係学会北海道支部連合大会No.21、2010年10月24日、北海学園大学
- [23] 櫻井洋平(発表者)、大佐賀毅、菅原広剛、村山明宏：NLDプラズマの解析(IX) - イオン生成の磁界強度依存性 -、平成22年度電気・情報関係学会北海道支部連合大会No.20、2010年10月24日、北海学園大学
- [24] H. Sugawara(発表者)：Concept of Dynamic Control of Magnetic Field for High-Throughput and Wide-Area Etching by Neutral Loop Discharge Plasma, 63rd Ann. Gaseous Electronics Conf., 7th Int. Conf. Reactive Plasmas, and 28th Symposium on Plasma Processing DTP.00027, Oct/4-8, 2010, Maison de la Chimie, Paris, France
- [25] 櫻井洋平(発表者)、大佐賀毅、菅原広剛、村山明宏：NLDプラズマの解析(VIII) - イオン生成・輸送の磁界依存性 -、平成22年電気学会基礎・材料・共通部門大会No.XX-4、2010年9月14日、琉球大学
- [26] 菅原広剛(発表者)、大佐賀毅、櫻井洋平、村山明宏：NLDプラズマの解析(VII) - セパトロクスに沿った電子輸送 -、平成22年電気学会基礎・材料・共通部門大会No.XX-3、2010年9月14日、琉球大学
- [27] 大佐賀毅(発表者)、菅原広剛、櫻井洋平、村山明宏：NLDプラズマの解析(VI) - プラズマ構造と電子電流分布 -、平成22年電気学会基礎・材料・共通部門大会No.XX-2、2010年9月14日、琉球大学

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

菅原 広剛 (SUGAWARA HIROTAKE)  
 北海道大学・大学院情報科学研究科・准教授  
 研究者番号：90241356