

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 28 年 5 月 20 日現在

機関番号：10101

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2013～2015

課題番号：25400528

研究課題名(和文)対向発散磁界を印加した誘導結合型プロセスプラズマ中の反応性粒子流の計算機解析

研究課題名(英文)Computational analysis of reactive particle flow in inductively coupled processing plasmas under confronting divergent magnetic fields

研究代表者

菅原 広剛 (Sugawara, Hirotake)

北海道大学・情報科学研究科・准教授

研究者番号：90241356

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,000,000円

研究成果の概要(和文)：誘導結合型プロセスプラズマに対向発散磁界を印加すると電子拡散が抑えられプラズマが濃淡2領域に分かれる。この働きを電子運動の計算機シミュレーションにより解析した。磁力線が電子を捉え磁界分界面を境に電子を閉じ込める仕組みを確認した。また、励起源アンテナから遠くても共鳴磁界域で電子エネルギー利得が顕著なことを新たに見出した。閉じ込めは強磁界下ほど強く、分界面電子通過には電子エネルギー依存性が見られた。共鳴磁界域外の分界面通過は高エネルギー電子に起こり易かった。共鳴磁界域内弱磁界域は磁氣的開口部となり低エネルギー電子も通過した。磁界強度を変化させ分界面の開口径を制御する磁気シャッター応用技術を提案した。

研究成果の概要(英文)：Confronting divergent magnetic fields (CDMFs) divide an inductively coupled processing plasma into two parts of high and low plasma densities by suppressing electron diffusion. This effect was analyzed by computer simulations of electron motion. The electron confinement by the separatrix of the CDMFs was confirmed to occur with electron capture by magnetic flux lines. In addition, it was found that a significant electron energy gain by the electron cyclotron resonance occurred even in a region far from the radio-frequency (rf) antenna used to drive the plasma. The electron confinement worked well under strong magnetic fields, and the electron passage across the separatrix was energy-dependent. That across the outer separatrix tended to occur for high-energy electrons. On the other hand, that via the weak magnetic field (a magnetic aperture) inside the rf-resonant region was allowed even for low-energy electrons. An application of the separatrix as a magnetic shutter was proposed.

研究分野：プラズマエレクトロニクス

キーワード：磁化プラズマ 誘導結合型プラズマ フィルタ効果 シミュレーション 電子空間分布 電子エネルギー利得 磁界制御 電子サイクロトロン共鳴

1. 研究開始当初の背景

プロセスプラズマは半導体・光集積回路、MEMS、太陽電池パネル、平面型ディスプレイなどの製造工程で素子や配線の微細加工や表面処理に用いられる。材料ガスを分解して得た反応活性種を基板に導き、成膜やエッチングなどを行う。処理効率向上のための大面積・均一・高速処理の他、微細化に伴い顕在化したイオン射突や電荷蓄積による損傷を避けるソフトなプロセスの技術も望まれるようになっていた。

当時研究代表者は、先行研究で零磁界環状特異点を持つ4極磁界を印加した半導体エッチング用誘導結合型プラズマの一種、磁気中性線環状放電 (Neutral Loop Discharge) プラズマの制御のため電磁界下の電子挙動や反応活性種生成輸送過程を解析していた。反応活性種のうちイオンはプラズマ電位やバイアスにより、中性ラジカルは拡散により基板に導かれるが、磁界による電子の行動範囲とエネルギーの調整を通じた反応活性種生成位置制御が反応活性種の基板入射分布・量に大きく影響するとの結果を得ていた。

一方、独・ルール大学グループは、零磁界特異点 (X点) を持つ対向発散磁界 (図1) をイオン源水素プラズマに印加すると電子温度に急勾配ができることを報告していたが (T. Tsankov and U. Czarnetzki, 2011, American Institute of Physics Conference Proceedings 1390 第2回負イオン・ビーム源国際シンポジウム140-149)、その仕組みは当時十分に解析・解明されていなかった。

これら先行研究を踏まえ、研究代表者は、対向発散磁界の働きが低損傷プロセスのためのプラズマ制御に利用できるのではないかとこの着想を得た。対向発散磁界がプラズマを高密度の反応活性種生成領域と低密度の反応活性種輸送領域とに分離する効果は、基板損傷回避策の一つであるリモートプラズマの利点が短距離で現れることを意味し、装置小型化に通じる可能性が見込まれた。先行研究で得られた知見に基づく洞察と予備解析から、対向発散磁界下では磁力線が電子を束縛し下部領域への拡散を抑制すると基本的モデルが立てられ、対向発散磁界の特徴であるX点や分界線/分界面 (separatrix、以下立体的に捉えた際の呼称である分界面を用いる) の具体的働きに関心が向けられた。

2. 研究の目的

対向発散磁界が誘導結合型プロセスプラズマ中の電子の行動範囲を制限しプラズマ領域を分かち働きを計算機シミュレーションにより再現・検証することが本研究計画の目的として掲げられた。対向発散磁界によるプラズマ中の反応性粒子の生成・輸送の制御指針を得、プロセス対象の損傷が少ないソフトプロセスへの応用を提案することを目標とした。具体的には、対向発散磁界下の電子運動の解析により次のように諸特性を検討す

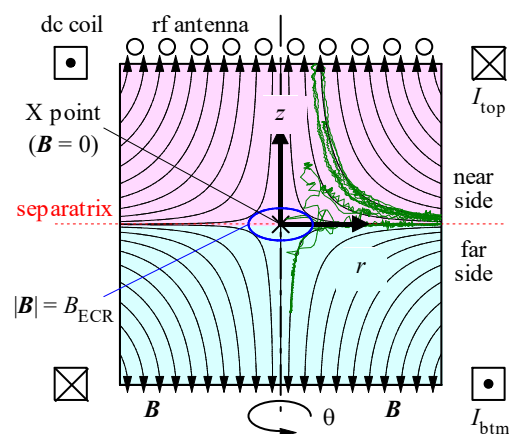


図1 対向発散磁界とプラズマ装置の模式図 (主な発表論文等、学会発表^⑬)

ることを計画した。

電子運動に及ぼす対向発散磁界の効果の詳細を観察する。電子空間分布や平均電子エネルギー分布など基本的プラズマ構造とその成因を解明する。分界面による高密度領域/低密度領域分離機構の詳細を検討する。反応活性種の生成と輸送に及ぼす諸条件と制御性を検討する。

3. 研究の方法

対向発散磁界下の電子運動の解析のため、原形となるモンテカルロ法粒子追跡プログラムを改造し、対向発散磁界下および交流電界下の基本的電子運動を再現・観察した。まず単電子運動の追跡を行い要素的運動を確認した後、複数電子の飛行経路の追跡とプラズマ容器内位置依存の諸特性 (平均エネルギー、エネルギー利得、気体分子との衝突) の統計を見ることで、プラズマ構造とその成因の解析、特に電子の分界面通過特性を解析した。また、対向発散磁界分界面の高さや磁界強度、装置形状を変えて対向発散磁界分界面の効果の諸条件依存性を観察した。電磁界下電子運動解析プログラムに、直流コイルで印加する対向発散磁界 (静磁界) と平面螺旋型高周波 (ラジオ周波数 (RF) 13.56MHz) アンテナにより誘起する誘導電界 (交流電界) の分布情報を与え、ローレンツ力ならびにクーロン力の下での電子の運動方程式をルンゲークッタ法により解くことで電子の軌道を計算した。計画の後段では、電子、プラズマ中で電離により生じた正イオン、ならびに外部から印加するバイアスによる電界を考慮できるようにプログラムの拡張を行った。電子と気体分子の衝突・反応過程は、アルゴンガスならびに水素ガスの電子衝突断面積から導出した衝突確率を基に乱数を用いて事象の生起判定・選択を行った。電子運動の観察は、電子の軌跡を記録し描出することにより行った。また、電子の分界面通過時刻、位置、エネルギーを記録し、数万個オーダの電子を追跡して統計を取り、分界面の働きを検討するためのデータを得た。

4. 研究成果

(1) 内径40cm、高さ40cmの反応容器を想定して行った電子運動の観察では、以降の解析でプラズマ特性を電子運動から説明する際の基礎となる次の基本的電子運動が識別された。電子は磁力線に巻き付く旋回運動（サイクロトロン運動）をし、磁力線に沿って導かれ、境界での反射や磁気鏡効果による押し戻しで磁力線に沿って往復運動した。旋回運動中の $E \times B$ ドリフトによる旋回中心の秤動が観察された。対向発散磁界中心部X点付近の弱磁界域では旋回半径が大きく旋回周期も長いいためRF電界交番周期内に旋回が閉じず、周期性なくふらつくカオス的運動を示した。

(2) 対向発散磁界下の電子空間分布は、電界と磁界が強いプラズマ反応容器天井付近側壁際で高密度となる傾向があった（図2）。同領域では磁界の束縛が強く磁力線に沿った往復運動の周期が短いためと考察された。電離によるイオン生成はRFアンテナ直下容器天井付近で多かった。平均電子エネルギーはX点付近の弱磁界下で高く（図2）、磁界の束縛が弱いことと(3)で述べる電子サイクロトロン共鳴の影響と考えられた。これらは実験的に未確認の諸特性を予測したものである。電子数密度と平均電子エネルギーの積である電子エネルギー密度（プラズマ発光現象と相関があると考えられる量）をアーベル変換によりプラズマの正面から見た姿に投影描出したところ、実験観測結果を報告した文献

(T. Tsankov and U. Czarnetzki, 2011, IEEE Transactions on Plasma Science **39**, 2538-2539)に見られる発光強度分布によく似た形状が再現された。類似性は、プラズマ反応容器天井付近の容器半径半ばの位置における最大値、分界面における電子エネルギー密度の急減、X点付近から下部領域への拡散の3点が指摘された。この結果により解析モデルが基本的プラズマ特性を再現しており妥当であると判断された。

(3) 電子エネルギー利得は、プラズマ反応容器上部に備えられたプラズマ駆動用RFアンテナ直下の高電界領域に加え、X点の周囲に形成されるRF共鳴磁界域（サイクロトロン周波数が交流電界周波数13.56MHzに一致する磁界強度0.48mTの領域）でも生じており、RF共鳴磁界域がRFアンテナから離れていてもエネルギー利得が顕著なことが見出された（図3）。この点は解析による発見・予測であり、今後実験的検証やプラズマ維持への寄与についての調査が待たれる。分界面を上を平行移動させプラズマ閉じ込め領域を狭めると、電子が励起源RFアンテナ付近により長く滞在することで電子へのエネルギー供給が強まり、また、電子数密度も上がりエネルギー密度が一層高まる様子が観察された。

(4) 電子の分界面通過は、動きの速い高エネ

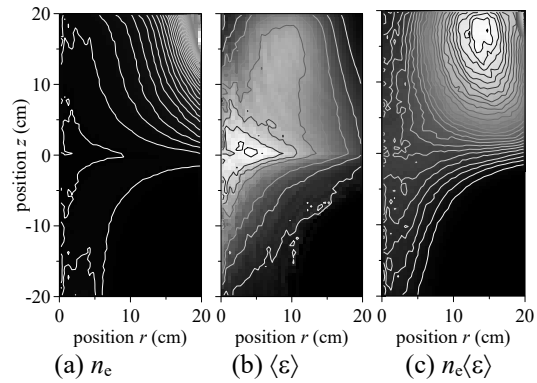


図2 (a) 電子空間分布、(b) 平均電子エネルギー分布、(c) 電子エネルギー密度分布
(主な発表論文等、学会発表⑤)

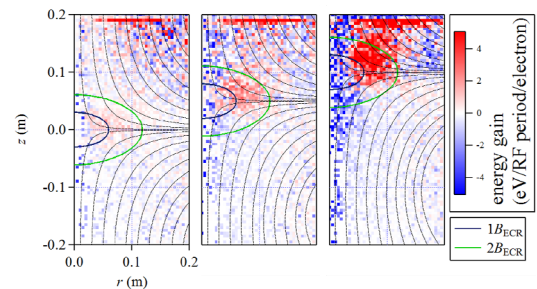


図3 分界面を上下移動させた場合の電子エネルギー利得分布
(主な発表論文等、学会発表⑩)

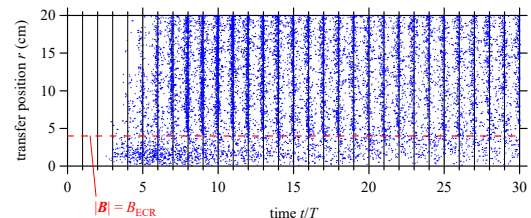


図4 電子の分界面通過時の位置とRF電界位相の関係
(主な発表論文等、学会発表⑬)

ルギー電子が先行した。弱磁界領域のカオス的運動によるものと、強磁界領域における気体分子との衝突・散乱の際の旋回中心変位（磁力線乗り換え）によるものが観察された。前者はRF電界への位相依存性がなく連続的であったが、後者はRF電界に同期して電界交番周期終盤に集中する脈動的傾向が見られた。電界の交番周期の後半半周期は $E \times B$ ドリフトが下を向く期間に当たることから、強磁界域での電子の分界面通過は $E \times B$ ドリフトによっても起こることが推察された（図4）。

(5) 電子の分界面通過時の諸特性の統計を取得した結果、対向発散磁界中心部X点の周囲の弱磁界域（RF共鳴磁界域の内側、磁界強度0.48mT以下の領域）が分界面の磁氣的開口部となっており、開口部を通じて下部領域へ拡散する電子の通過面密度が高かった（図5）。

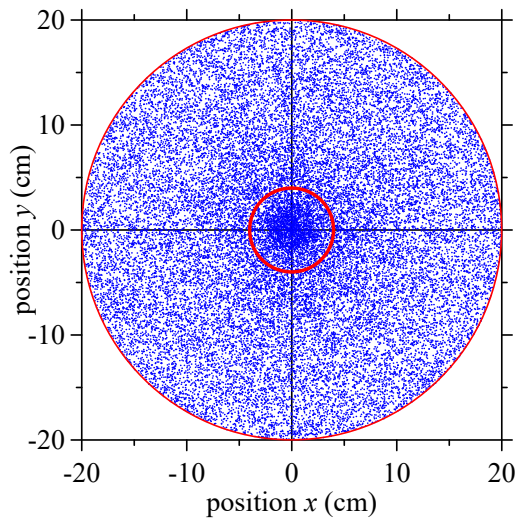


図5 電子の分界面通過位置分布
(主な発表論文等、学会発表⑩)

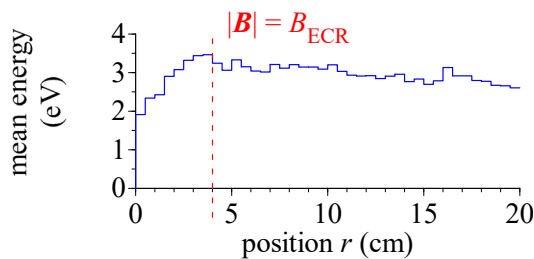


図6 電子の分界面通過時の平均エネルギー位置依存性
(主な発表論文等、学会発表⑩)

分界面通過時の電子エネルギーの平均値を場所別に観察したところ、RF共鳴磁界域の外側の強磁界域を通過する電子の平均エネルギーは高く、RF共鳴磁界域の内側の磁氣的開口部を通過する電子の平均エネルギーは低かった(図6)。

電子回旋半径は高エネルギー電子ほど大きくなり得て衝突散乱時の回旋中心変位も大きくなる傾向があるため、強磁界下の衝突散乱による分界面通過は高エネルギー電子ほど起こり易いと推察された。磁力線が分界面に接近する外縁部では分界面を通過する電子の平均エネルギーがやや下がる傾向が見られた。回旋半径が小さな低エネルギー電子の回旋中心変位でも分界面を超えて下部領域に移行できるためと説明された。

電子の分界面通過のエネルギー依存性が、対向発散磁界分界面の持つフィルタ効果の基礎特性として指摘された。また、開口部を通じた電子拡散の様子から、磁界強度増減による開口部開閉が磁気シャッタとして応用可能であろうとの技術的提案がなされた。これら諸特性は学会発表⑤、⑦の招待講演において主要な着目点として論じられた。

(6) 実験観測結果の報告文献(前掲Tsankov and Czarnetzki)に倣い小型リアクタモデル

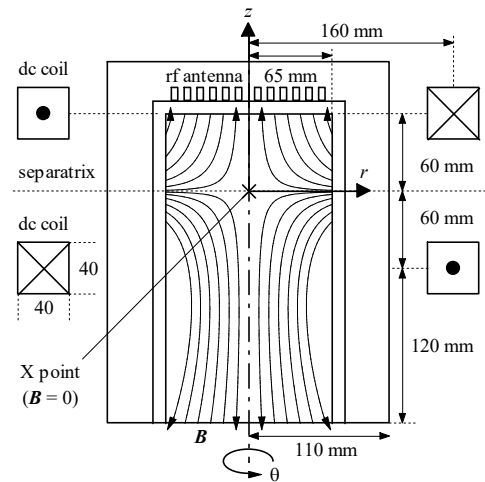


図7 小型リアクタモデル
(主な発表論文等、学会発表⑥)

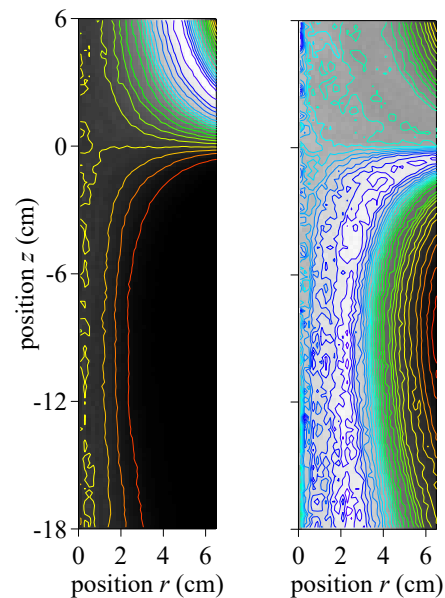


図8 強磁界下(左)と弱磁界下(右)の電子閉じ込め効果の比較
(主な発表論文等、学会発表⑥)

を設定し(図7)、対向発散磁界分界面の電子閉じ込め効果の磁界強度依存性を観察した。強磁界を印加した場合は閉じ込め効果がよく機能した(図8左)。励起源アンテナや直流コイルがプラズマに近い小型リアクタではその効果が顕著に表れるものと考察された。また、小型リアクタでは短距離で磁界強度が変化することから、磁界傾度が新たなパラメータとなる可能性が指摘された。

弱磁界下では、主にX点近傍の弱磁界域が磁氣的開口部となって電子が下部領域へ拡散した(図8右)。弱磁界下で分界面を通過し下部領域に拡散した電子は、励起源RFアンテナから遠ざかった結果それ以降エネルギー供給を受け難くなるため、下部領域から上部領域への逆方向の電子分界面通過が起こり難くなることが観察された。上下領域の非対称

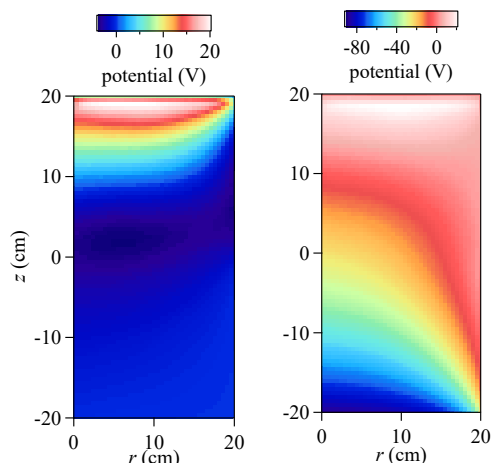


図9 反応容器内ポテンシャル分布
 バイアス無 (左)、バイアス有 (右)、
 底部バイアス $r = 0 \sim 18\text{cm}$, -100V
 側壁バイアス $z = 13 \sim 15\text{cm}$, $+10\text{V}$
 (主な発表論文等、学会発表①)

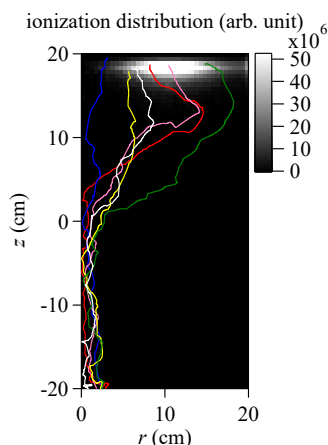


図10 反応容器底部 (基板) へ到達する
 イオンの飛跡の例
 (主な発表論文等、学会発表①)

性に起因する電子分界面通過の一方通行特性 (逆阻止性) が見出された。

(7) 容器底部の基板への負バイアス印加により反応容器内の電位ポテンシャル分布は大きく変化し (図9)、天井付近で生じたイオンが容器底部の基板まで導かれるようになった (図10)。基板負バイアス印加だけでは励起源近傍で生じた正イオンの多くが拡散途中で天井や側壁に接触して失われたが、正イオンが入射し易い側壁の一部に10V程度の正バイアスを印加すると基板底部へ到達するイオンの割合がほぼ倍増した。正イオンの誘導にバイアスが効果的と見込まれ、その設計・制御が新たな課題として提起された。

(8) 対向発散磁界分界面の電子閉じ込め効果の定量的評価に当たり、上部領域から下部領域への電子移行判定法が新たな論点として着目された。電子は磁力線の周りで旋回す

るため、電子の座標にのみ依拠した判定では旋回軌道の一部が分界面下を通るだけの一時的通過による見かけの領域移行が多くなった。そのため、電子を導く磁力線が属する領域に着目した判定法が考案された。

まず、上部領域から発した電子のうち反応容器底部の基板に達したものは確実に領域移行をしたと見なせる。次に、単純に電子の座標に基いて下部領域移行を判定する従来法と、これに加えて電子旋回中心の分界面通過を以て下部領域移行と判定する場合とを比較した結果、後者の新判定法の方が反応容器底部に到達した電子数に近かった。電子旋回中心に着目した電子所属領域の識別がより実質的であると考察された。

5. 主な発表論文等

[雑誌論文] (計2件)

- ① H. Sugawara and S. Ogino: Fundamental study on filter effect of confronting divergent magnetic fields applied to low-pressure inductively coupled plasmas, Japanese Journal of Applied Physics (掲載決定) (査読有)
- ② Y. Minami, Y. Asami, and H. Sugawara: Structure and energy deposition process of an inductively coupled plasma under confronting divergent magnetic fields, IEEE Transactions on Plasma Science **42**(10), 2550-2551 (2014) (査読有)
DOI: 10.1109/TPS.2014.2343275

[学会発表] (計19件)

- ① 仲俣涼平 (発表者)、菅原広剛: X点プラズマ中イオンの容器底面への効率的誘導のための側壁バイアス印加の効果、平成28年電気学会全国大会 No. 1-053、2016年3月16日、東北大学河内キャンパス (宮城県仙台市)
- ② 山本達平 (発表者)、菅原広剛、荻野創: 対向発散磁界下誘導結合型磁化プラズマ中の電子運動の解析における磁気閉じ込め効果定量評価法、平成28年電気学会全国大会 No. 1-052、2016年3月16日、東北大学河内キャンパス (宮城県仙台市)
- ③ 仲俣涼平 (発表者)、菅原広剛: X点プラズマ中の電子運動に及ぼす直流バイアス印加の効果、平成27年度電気・情報関係学会北海道支部連合大会 No. 100、2015年11月8日、北見工業大学 (北海道北見市)
- ④ 荻野創 (発表者)、菅原広剛: X点プラズマ駆動用対向発散磁界分界面の電子閉じ込め効果の解析、平成27年度電気・情報関係学会北海道支部連合大会 No. 99、2015年11月8日、北見工業大学 (北海道北見市)

- ⑤ H. Sugawara (発表者) : Fundamental study on filter effect of confronting divergent magnetic fields applied to a low-pressure inductively coupled plasma, 9th International Conference on Reactive Plasmas / 68th Annual Gaseous Electronics Conference (American Physical Society) / 33rd Symposium on Plasma Processing, No. KW2.00001, October 11-16, 2015 Hawaii Convention Center, Hawaii, USA (招待講演)
- ⑥ 菅原広剛 (発表者) : 小型リアクターモデルを用いた対向発散磁界下誘導結合型水素プラズマの解析、平成27年電気学会基礎・材料・共通部門大会 No. 12-B-a1-4、2015年9月18日、金沢大学角間キャンパス (石川県金沢市)
- ⑦ H. Sugawara (発表者) : Electron behavior under characteristic magnetic fields applied to inductively coupled plasmas for control of charged particle transport, XVIII International Workshop on Low-Energy Positron and Positronium Physics & XIX International Symposium on Electron-Molecule Collisions and Swarms, TLP9/TLE9, July 17-20, 2015, Universidade Nova de Lisboa, Lisboa, Portugal (Topical Lecture 招待講演)
- ⑧ 荻野創 (発表者)、菅原広剛 : X点プラズマ駆動用対向発散磁界中の位置依存電子エネルギー分布の解析、平成27年電気学会プラズマ・放電・パルスパワー合同研究会 PST-15-037/ED-15-055/PPT-15-037、2015年6月6日、北海道大学札幌キャンパス (北海道札幌市)
- ⑨ 菅原広剛 (発表者) : 対向発散磁界下誘導結合水素プラズマの解析、平成27年電気学会全国大会 No. 1-166、2015年3月24日、東京都市大学世田谷キャンパス (東京都世田谷区)
- ⑩ 菅原広剛 (発表者) : 対向発散磁界下誘導結合型プラズマ中の磁界分界面電子通過特性、平成26年度電気・情報関係学会北海道支部連合大会 No. 58、2014年10月25日、北海道科学大学 (北海道札幌市)
- ⑪ 荻野創 (発表者)、南雄大、菅原広剛、村山明宏 : X点プラズマ駆動用対向発散磁界中の電子加速機構の解析、平成26年度電気・情報関係学会北海道支部連合大会 No. 57、2014年10月25日、北海道科学大学 (北海道札幌市)
- ⑫ 南雄大 (発表者)、菅原広剛、村山明宏 : X点プラズマの電離分布に及ぼす蓄積電荷の影響、平成26年電気学会プラズマ研究会 PST-14-041、2014年9月9日、大阪府立大学なかもずキャンパス (大阪府堺市)
- ⑬ H. Sugawara (発表者) , Y. Minami, S. Ogino: Monte Carlo simulation of electron diffusion across separatrix between confronting divergent magnetic fields, XXII Europhysics Conference on Atomic and Molecular Physics of Ionized Gases, No. P1-02-04, July 15-19, 2014, Greifswald Town Hall, Greifswald, Germany (査読有)
- ⑭ 菅原広剛 (発表者) : 誘導結合型磁化プラズマ駆動用不均一磁界下の電子運動、2014年度放電学会シンポジウム、2014年6月13日、千葉工業大学津田沼キャンパス (千葉県習志野市)
- ⑮ 菅原広剛 (発表者) : 特殊形状磁界下プラズマ中の荷電粒子輸送、平成26年電気学会全国大会 No. S3-8、2014年3月20日、愛媛大学城北キャンパス (愛媛県松山市)
- ⑯ 南雄大 (発表者)、浅見勇介、菅原広剛、村山明宏 : 磁界分界面を通過する拡散電子のエネルギー分布解析、平成26年電気学会全国大会 No. 1-044、2014年3月19日、愛媛大学城北キャンパス (愛媛県松山市)
- ⑰ 南雄大 (発表者)、浅見勇介、菅原広剛、村山明宏 : X点プラズマ発光領域の諸特性解析、平成25年度電気・情報関係学会北海道支部連合大会 No. 79、2013年10月19日、室蘭工業大学 (北海道室蘭市)
- ⑱ 南雄大 (発表者)、浅見勇介、菅原広剛、村山明宏 : X点プラズマ中電子空間分布の磁界分界面位置依存性、平成25年電気学会基礎・材料・共通部門大会 No. 12-B-a1-4、2013年9月12日、横浜国立大学 (神奈川県横浜市)
- ⑲ H. Sugawara (発表者) and Y. Minami: Monte Carlo simulation of electron motion in confronting divergent magnetic fields, XXXI International Conference on Phenomena in Ionized Gases, No. PS3-010, July 14-19, 2013, Granada Congress Centre, Granada, Spain

6. 研究組織

(1) 研究代表者

菅原 広剛 (SUGAWARA HIROTAKÉ)
北海道大学・大学院情報科学研究科・准教授
研究者番号 : 9 0 2 4 1 3 5 6