



研究開発ノート

反応性プラズマ計測用加熱プローブの開発

高田 昇治, 林 大雄
佐々木 浩一, 門田 清
(名古屋大学大学院工学研究科)

Development of a Heated Probe for Diagnostics of Reactive Plasmas

TAKADA Noriharu, HAYASHI Daiyu, SASAKI Koichi and KADOTA Kiyoshi
Department of Electronics, Nagoya University, Nagoya 464-8603, Japan
(Received 2 February 1998)

Abstract

This paper reports the development of a heated Langmuir probe for diagnostics of reactive plasmas which are used for various material processing. Diagnostics of reactive plasmas with conventional Langmuir probes have drawbacks in that the probe tip is covered with thin insulated films. The tip of the probe presented in this paper was indirectly heated to 1,000 K to avoid the deposition of insulated films on the surface. By utilizing a commercial sheathed heater for the probe tip, the probe was constructed simply and economically. The effectiveness of the heated probe was examined in an inductively coupled CF_4 plasma. In addition, the F^- density in a helicon-wave CF_4 plasma was measured by the heated probe combined with laser photodetachment.

Keywords:

heated probe, reactive plasma, deposition, low-pressure and high-density CF_4 plasma, F^- density

1. はじめに

プラズマの電子密度や電子温度などを簡単に測定する方法として、静電プローブが広く一般的に用いられている。この計測法は、プラズマ中に挿入したタングステンなどの金属にプラスおよびマイナス数十ボルトの電圧を印加し、プラズマを介して流れる電流をモニタするだけで済むことから、簡単にしかも安価に計測系を作製することができて、多くのプラズマに対して適用が可能である。ところが、反応性ガスを用いたプラズマに対してプローブ測定を試みると、その困難さに直面する。これは、反応性プラズマ中に多く存在する化学的に活性な中性ラジカルが、金属プローブの表面に絶縁性の堆積膜を形成するためである。堆積膜による電流値の減少は、プラズマパラメータの測定誤差を増大させる結果となる。

corresponding author's e-mail: takada@nuee.nagoya-u.ac.jp

半導体デバイスのドライプロセスにおいて、下地シリコン (Si) に対する酸化シリコン (SiO_2) の選択的ドライエッチングに広く使用されているフルオロカーボンプラズマ (CF_4 , C_4F_8 など) は、典型的な反応性プラズマである。このプラズマ中では、CF や CF_2 などのラジカルにより絶縁性の堆積膜が真空容器内壁に堆積する。したがって、フルオロカーボンプラズマにプローブ測定を試みる場合には、この堆積膜の問題を克服しなければならない。

半導体デバイスのプロセスの分野では、 $0.1 \mu\text{m}$ 以下の超微細加工を達成するために 10 mTorr 以下の圧力、 10^{11}cm^{-3} 以上の電子密度を有する低圧高密度プラズマ源が必要不可欠とされている。しかしながら、その一方で、低圧高密度プラズマを用いたエッチングプロセスの

問題点もいくつか指摘されている。たとえば、プラズマ中の正電荷による基板のチャージアップによるノッチ[1]やマイクロローディング効果[2]といった問題が生じることがあげられる。負イオンは、基板のチャージアップを抑え、高精度エッチングが得られる可能性があることから広く注目されており、そのプラズマ中での振る舞いが精力的に研究されている[3,4]。放電中や放電停止後における負イオン密度の時間・空間変化は、負イオンの生成・消滅プロセスを知る上で重要な情報であり、静電プローブ法[5]、質量分析法[6-8]やレーザー光脱離法[9-11]などの手法を用いて計測されている。我々は、高密度 CF_4 プラズマ中での負イオンの振る舞いを調べるために、絶対密度を最も高い信頼性で求めることができるプローブ支援型レーザー光脱離法[12]による測定を計画した。この方法では、プラズマに測定対象となる負イオンの電子親和力以上の光子エネルギーを有するレーザー光を照射することにより負イオンから電子を剝離し、脱離した電子を正バイアスされた静電プローブにより捕集する方法である。そこで我々は、低圧高密度フルオロカーボンプラズマ中の負イオンの振る舞いを調べるために必要不可欠な静電プローブの開発を計測に先立って行うことにした。

これまでも、反応性プラズマ中でプローブ測定を行う場合の様々な対策が報告されている。プローブ表面に堆積した膜を取り除くために正イオン照射などによるスパッタリングが一般的に行われているが、回復に時間がかかるのが難点である[13]。また、絶縁膜の堆積を避けるためにプローブ自身を高速にプラズマ中に挿引する装置がすでに製品として販売されているが、高価である。さらには、プローブの加熱によりプローブ表面の堆積膜を除去し、本来の性能を回復維持させる試みも行われている。加熱には、プラズマに対して正バイアス時に流れる比較的大きな電子電流を利用することも考えられるが、加熱能力が電子密度に直接影響されるので、放電条件を変えた実験では問題を生じやすい。制御可能な条件で加熱を行うためには、外部回路を用いた方法の方が優れている。外部加熱の方法としては、プローブ回路に加熱電流を重畳し、プローブのワイヤー自身を抵抗素子として用いることにより直接的に加熱を行う方法[14]と、加熱源から間接的にプローブの加熱を行う方法[15]が試みられている。前者は、加熱ワイヤー両端での電圧降下やワイヤーの周辺に発生する磁場による計測への影響が問題となる。後者は、構造の複雑さと加熱によるリーク電流発生等の課題がある。

ヘリコン波励起の低圧高密度 CF_4 プラズマ中では、ラジカルな堆積によるプローブ表面の汚染は、これまでの観測から瞬時に進行することが予想されるために、プローブ表面の回復はイオン等の照射による方法よりも加熱による方法が効果的であると考えられる。また、高密度であるがゆえに、プローブ金属自身の損耗（フラジカルによる金属のエッチング）が予想されるので、ワイヤー型では長時間の使用に問題がある。そこで本報告では、間接的に加熱を行うタイプで極めて簡易型の加熱プローブの開発を行ったので報告する。このプローブは、低圧高密度 CF_4 プラズマ中の負イオンをプローブ支援型レーザー光脱離法を用いて計測するために開発したものであり、市販のシーズドヒータの先端部分をプローブとして利用しているので取替えが容易に行えて、しかも極めて安価である。以下の章では、本簡易型加熱プローブの構造および基本性能について述べる。また実際に、ヘリコン波励起の CF_4 プラズマに本加熱プローブを適用したところ十分な性能を得ることができたので合わせて報告する。

2. 加熱プローブの概要

今回開発した加熱プローブの概略図を Fig. 1 に示したが、その構造は極めて簡単である。プローブチップには、真空容器内での加熱が可能な市販のシーズドヒータ（岡崎製作所製：マイクロヒータ）を利用した。ヒータ部分の長さは約 110 mm、直径は 3.2 mm ϕ であり、その内部に加熱源のニッケルクロム線 (0.53 mm ϕ) と絶縁用の MgO が詰められている。また、ヒータの鞘の部分の材質はステンレス (SUS316) であり、その先端部分は平坦な形状となっている。また、必要な長さだけをプラズマにさらすことができるように（通常は 0.2 mm~3 mm 程度）、ヒータのまわりを石英ガラスのパイプでおおって、その長さを随時調整可能な構造とした。また、真空容器のゲージポートよりプラズマ中に導入するためにプローブ全体を直径 15 mm ϕ のステンレスパイプに収納した。

本加熱プローブは、内部のニッケルクロム線に直流電圧 10 V を印加して 5.5 A の電流を通電することにより約 1,000 K まで加熱が可能な構造となっている。プローブの温度は、校正された熱電対によりモニタした。内部のニッケルクロム線は 1 ターンで先端から約 2 mm のところで折り返して埋設されているので、電流を 5.5 A 流しても、ニッケルクロム線の周りに発生する磁場によるプラズマ測定への影響は小さいと思われる。また、本加

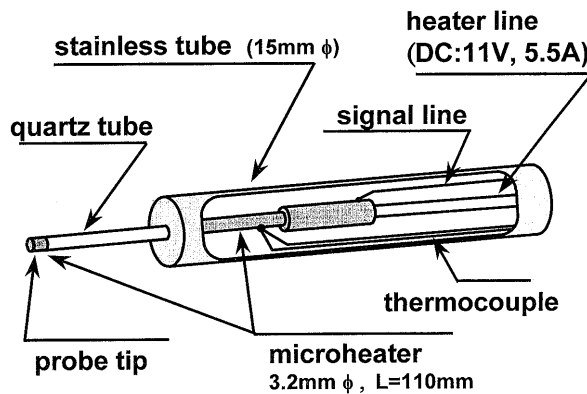


Fig. 1 Schematic of the heated probe.

熱プローブをレーザー光脱離法による負イオン診断に用いる場合には、レーザー（エキシマレーザー）放電による電磁ノイズの影響が問題となるので、プローブおよび電源等を含めた測定システムへ電磁シールドを施した。

本加熱プローブの使用目的である低圧（<10 mTorr）・高密度（ $n_e = 10^{10} \sim 10^{13} \text{ cm}^{-3}$ ）プラズマでは、電子の平均自由行程 λ_{eg} は電子と中性粒子との衝突断面積 σ_{eg} を 10^{-15} cm^2 のオーダーとすると $\lambda_{eg} = 1/(\sigma_{eg} n_g)$ より数 cm となる。ここで、 n_g は中性粒子の密度である。これに対して、プローブシースの厚さ d をデバイ長 λ_{De} 程度とすれば、電子密度 n_e が 10^{10} cm^{-3} 以上で電子温度 T_e が約 10 eV のプラズマを想定すると、 λ_{De} は 0.03 cm 以下となるので $d \ll \lambda_{eg}$ である。それゆえ、シース端に達した電子はすべてプローブにより捕集可能となる。したがって、開発した加熱プローブは、低圧高密度プラズマに対してシース内での電子衝突を無視したプローブ理論を用いて密度等の評価に用いることができる [16-17]。

3. 結果と検討

3.1 Ar プラズマへの適用

最初に我々は、プローブの加熱が計測結果に与える影響について検討を行った。加熱によりプローブ金属表面から放出される熱電子が測定されるイオン飽和電流値および電子飽和電流値ほどの程度影響するかを調べた。Fig. 2 には実験に用いた誘導結合型プラズマ (ICP) 装置の概略図を示した。スパイラル型のアンテナに整合器を介して 13.56 MHz の高周波を印加して得られるアルゴンプラズマに対して、プローブの加熱の有無による電流値の違いを調べた。その結果、加熱することによりイオン飽和電流および電子飽和電流はともに 1.5-2.0 倍に増

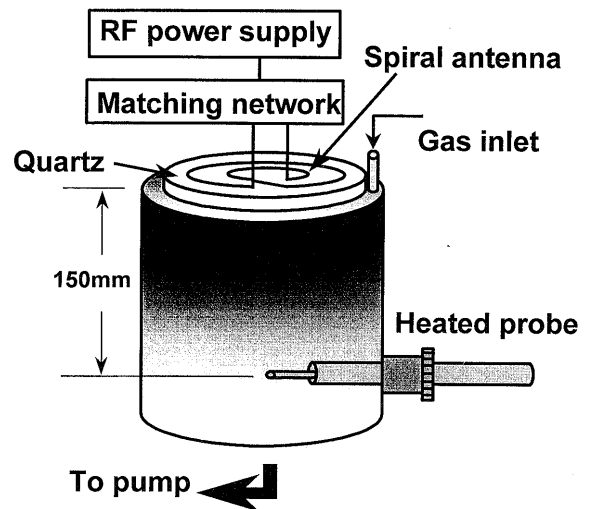


Fig. 2 Inductively coupled plasma (ICP) reactor used in the experiment.

Table 1 Typical values of plasma parameters measured with and without probe heating for ICP Ar plasma.

	Ion saturation current density [A/m ²]	Electron saturation current density [A/m ²]	Electron temperature [eV]	Ion density [$\times 10^{11} \text{ cm}^{-3}$]	Electron density [$\times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$]
Without heating	133	4980	4.6	4.1	8.8
With heating	174	3980	4.4	5.4	7.0

えることがわかった。さらに、約 1,000 K にプローブを加熱することにより、プローブ材料が膨張し、プローブ先端部が再現性よく約 1.5 mm（元の約 2 倍）伸びることを確認した。Table 1 には、加熱によるプローブ先端部の伸びの影響を考慮して、加熱前後の電圧-電流特性 (V-I トレース) より評価したイオンおよび電子密度、電子温度を示した。表より、加熱による電子温度の変化がほとんどないことから、電流密度の変化は測定された電子およびイオン密度の変化を反映していることがわかる。加熱前後に見られる 20% 程度の電流密度変化は、熱電子およびプローブ内部のヒータ線周辺に発生する磁場による影響が考えられるが、イオンおよび電子密度の評価に及ぼす影響は無視できる程度である。なお、表中イオン密度の方が電子密度に比べて高く評価されるのは、通常の間筒プローブ（非加熱）を用いた実験結果と同様であった。

3.2 低密度 CF₄ プラズマへの適用

次に反応性プラズマである CF₄ プラズマへの適用を試みた。まず、開発した加熱プローブの加熱の有効性を調べるために、V-I トレースの温度依存性を調べた。

Fig. 2 に示した ICP 装置で生成された CF_4 プラズマを用いて測定を行った。プラズマの放電条件は、パワー 1 kW, ガス圧力 5 mTorr, ガス流量 4.4 ccm とした。プローブはアンテナ直下に置かれた厚さ 10 mm, 直径 100 mm の石英ガラスより約 150 mm 離れた下流においてプラズマ中心部まで挿入した。Fig. 3 は、その実験結果を示す。本加熱プローブを約 1,000 K まで加熱し V-I トレースを記録した後、温度を約 890 K まで段階的に下降させてその都度計測を行ったところ、プローブの金属表面への絶縁性堆積膜の影響からイオン電流および電子電流が温度の低下とともに減少した。温度を約 890 K まで下げて数分後に再度約 1,000 K まで温度上昇させたところ、ほぼ元の V-I トレースに回復した。約 1,000 K 付近では、V-I トレースの電流値は温度変化による影響がほとんどなく飽和状態にあることから、プローブ表面の導電性が保たれていると考えられる。また、約 1,000 K 付近では V-I トレースの立ち上がりがほぼ一定電圧値になっていることより、プローブのチャージアップはなく、プローブ表面固有の仕事関数が維持されていると思われる [18]。ところが、加熱を行わないでプラズマ中に挿入すると急激に汚染が進むので、その後 10 分程度加熱を行っても約 1,000 K まで加熱時の V-I トレースが得られることはなく堆積膜の除去はできなかった。Fig. 4 には評価した見かけ上の電子密度と電子温度をプローブの温度に対してプロットした。プローブ温度の低下に伴い絶縁膜の影響から電子温度は高く、電子密度は低く誤評価されることとなった。また、約 1,000 K まで加熱時の V-I ト

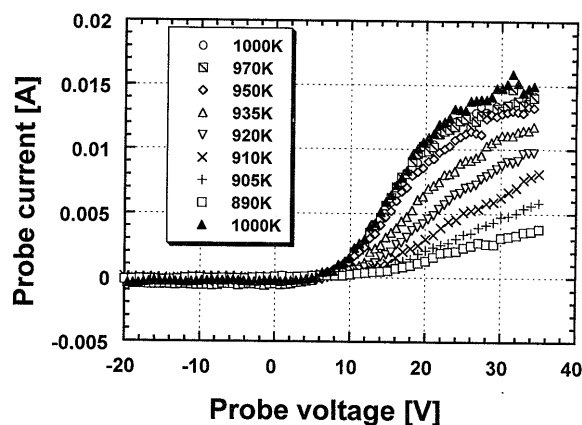


Fig. 3 Temperature dependence of voltage-current characteristics in ICP CF_4 plasmas. (The symbols of $\circ \sim \square$ indicate the V-I traces with decreasing temperature gradually from 1,000 K to 890 K. After that, the V-I trace increased in one step from 890 K to 1,000 K is indicated by the symbol $\blacktriangle$.)

レースより求めた電子密度は $1 \times 10^{10} \text{ cm}^{-3}$, 電子温度は 2–3 eV であった。以上のことより、本加熱プローブは、その使用目的である反応性 CF_4 プラズマに対しては約 1,000 K の加熱により絶縁性堆積膜に影響されない V-I トレースを求められることがわかった。これは、3.3 節で議論する高密度 CF_4 プラズマにおいてもほぼ同様の結果であった。ただし、今回と異なるガスの種類や放電条件を用いたプラズマではプローブに堆積する膜の組成や堆積速度が異なるために必要なプローブ加熱温度も違ってくる予想される。

3.3 高密度 CF_4 プラズマへの適用

さらに我々は、ヘリコン波励起の低圧高密度 CF_4 プラズマ (電子密度 $\sim 10^{11} \text{ cm}^{-3} - 10^{12} \text{ cm}^{-3}$) への適用を試みた。実験装置の詳細については文献 [19] に記述されている。一様磁場 1 kG, 13.56 MHz の高周波パワー 600 W, ガス圧力 2 mTorr にて、ヘリカルアンテナより約 6 cm 離れた位置で測定を行った。Fig. 5 には、イオン密度および電子密度のアフターグローにおける振る舞いを示した。本実験のプラズマは、負イオンの生成・消滅プロセスを知る上で重要な情報を提供する放電停止後の負イオン密度の振る舞いを調べるために、オン時間 10 ms, オフ時間 190 ms の繰り返し 5 Hz でパルス運転されており、放電停止からの時間をパラメータにして測定を行った。また、この図で示された電子密度に関しては、今回測定したプラズマが磁化プラズマであるため、電子飽和電流から電子密度を評価することが困難になる。これは、とくに電子が磁場の影響で磁場と垂直な方向への運動が制限されることによる。一方、本実験では、イオンはそのラーモア半径がプローブ半径に比べて大きくな

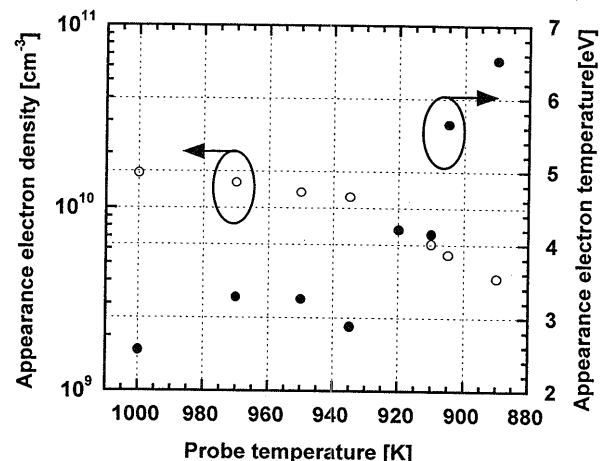


Fig. 4 Appearance electron density and electron temperature vs probe temperature evaluated for V-I traces of Fig. 3.

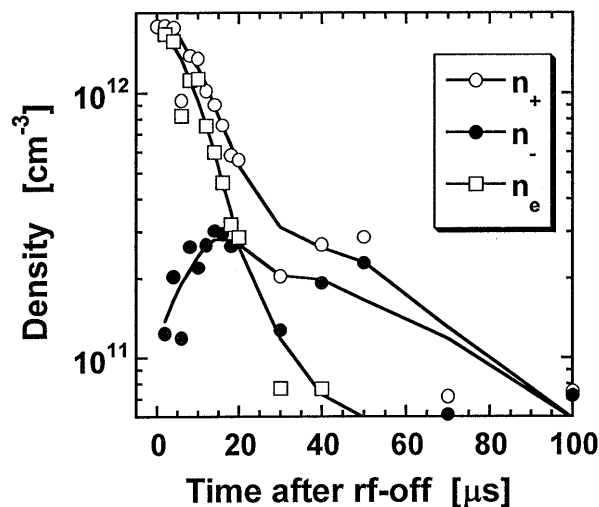


Fig. 5 Temporal variation of the positive ion (n_+), electron (n_e) and negative ion (n_-) densities observed in the afterglow of a CF_4 plasma.

るので磁場の影響が比較的少ないと考えられる[17,20,21]. そこで我々は、深い負バイアス時(-70 V)のイオン飽和電流値から準中性条件を用いて密度の評価を行った[19]. この結果、得られた放電中の電子密度は約 $1.8 \times 10^{12} \text{ cm}^{-3}$ であり、同様の装置、同一の放電条件でマイクロ波干渉計を用いて計測した値とほぼ一致した. また、放電停止後における電子密度が比較的早い減衰時間(約 $10 \mu\text{s}$)を示しているのは、電子の消滅が負イオン生成に寄与している結果であると考えられる. なお、本実験では、デューティ比5%のパルスプラズマを用いているので、プローブ電流自身によるプローブの加熱はほとんど見られなかった.

最後に本加熱プローブをレーザー光脱離法による負イオン密度測定に適用した. パワー600 W, ガス圧力2 mTorr, ガス流量3.3 cm³/minでヘリコン波励起により生成された CF_4 プラズマ中に加熱プローブをプラズマ中心まで挿入し、対向のポートより波長308 nmのエキシマレーザー光パルス(エネルギー: 4.03 eV)をプローブチップ面で直径約5 mmに集光させた. 支配的な負イオンである F^- の電子親和力は3.4 eVであるため、308 nm光で光脱離が起こる. プローブには、+50 Vのバイアスを印加して光脱離した電子を捕集した. Fig. 6には測定の一例として、レーザーパルスに同期して、背景となる電子飽和電流 I_{es} に重畳された光脱離電子電流 I_{pd} を示している. 図中、 I_{pd} に見られる振動は、異なるプラズマ条件では見られなくなることから測定システムによるものではなく、プラズマ中の波動現象などを反映したもので

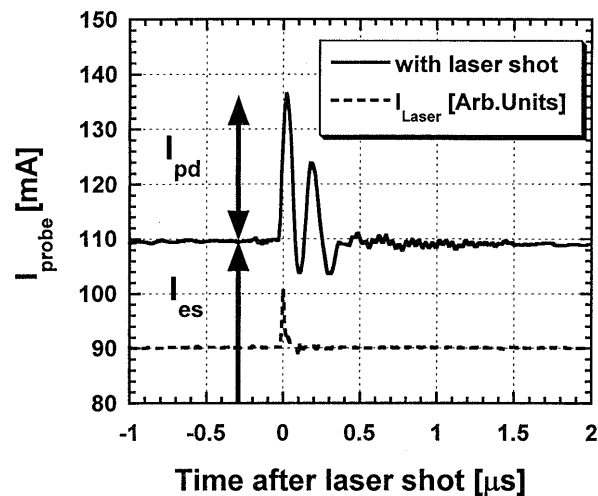


Fig. 6 Laser photodetachment current (I_{pd}) observed at the same time as laser irradiation, added to electron saturation current (I_{es}).

ある可能性が高い. 一般的に、負イオン密度 n_- は、

$$n_- = (I_{\text{pd}}/I_{\text{es}}) \cdot (n_e/\alpha)$$

のように I_{pd} と I_{es} に関係づけられている. ここで、 α は負イオンの光脱離効率(レーザー光強度などで決まり、本実験では約0.26)である. このようにして得られた I_{pd} と I_{es} の時間・空間分解測定により、負イオン絶対密度の放電停止後における振る舞いを調べることができた. 測定に際して、プローブ測定システムへのエキシマレーザーの放電ノイズの影響もなく、電磁的なシールドは良好であった. 測定結果の一例として、Fig. 5には負イオン密度の放電停止後100 μs までの様子を示した. これらの結果より、負イオンの生成・消滅プロセスについて検討することができた[19].

4. おわりに

低圧高密度 CF_4 プラズマに対してプローブ支援型レーザー光脱離法による負イオン診断に適用可能な簡易型加熱プローブの開発を行った. CF_4 プラズマ中でのプローブ測定には、絶縁性堆積膜に対する対策が必要不可欠となるが、本プローブでは、市販のヒータを用いて間接的にプローブ先端の加熱を行うことによりプローブ本来の性能を回復維持させた. また、実験結果から、約1,000 Kまで加熱することにより堆積絶縁膜による影響のない電圧-電流特性を得ることができた. また、ヘリコン波励起の低圧高密度 CF_4 プラズマに対して測定を行ったところ、評価された電子密度はマイクロ波干渉計

による測定結果ともよく一致した。さらには、プローブ支援型レーザー光脱離法による負イオン密度計測に本加熱プローブを適用し、良好な結果を得ることができた。

謝辞

この加熱プローブの開発を実行するにあたり支援をいただいた名古屋大学工学部電気系教室技術室の方々に感謝いたします。また、開発に際して有益なご助言および技術指導をいただいた名古屋大学工学部の井村立美技官と福森 勉技官に厚く感謝いたします。本研究は、文部省科学研究費補助金の支援を受けて実施された。

参考文献

- [1] T. Nozawa, T. Kinoshita, T. Nishizuka, A. Narai, T. Inoue and A. Nakae, Jpn. Appl. Phys. **34**, 2107 (1995).
- [2] N. Fujiwara, S. Ogino, T. Maruyama and M. Yoneda, Plasma Sources Sci. Technol. **5**, 126 (1996).
- [3] H. Ohake and S. Samukawa, Appl. Phys. Lett. **68**, 24 (1996).
- [4] T.H. Ahn, K. Nakamura and H. Sugai, Plasma Sources Sci. Technol. **5**, 139 (1996).
- [5] H. Amemiya, Jpn. J. Appl. Phys. **30**, 2601 (1991).
- [6] L.J. Overzet, J.H. Beberman and J.T. Verdeyen, J. Appl. Phys. **66**, 1622 (1989).
- [7] T. Mieno, Jpn. J. Appl. Phys. **33**, 4325 (1994).
- [8] K. Ura, K. Sasaki and K. Kadota, J. Plasma Fusion Res. **72**, 1204 (1996).
- [9] M. Bacal, G.W. Hamilton, A.M. Bruneteau and H.J. Doucet, Rev. Sci. Instrum. **50**, 719 (1979).
- [10] M. Haverlag, A. Kono, D. Passchier, G.W. Kroesen, J. Goedheer and F.A.J. de Hoog, J. Appl. Phys. **70**, 3472 (1991).
- [11] D. Hayashi and K. Kadota, J. Appl. Phys. **83**, 697 (1998).
- [12] 門田 清: プラズマ・核融合学会誌 **72**, 1124 (1996).
- [13] 沖村邦雄, 柴田 明: 真空 **36**, 165 (1993).
- [14] B.C. Bell and D.A. Glocker, J. Vac. Sci. Technol. A **6**, 2047 (1988).
- [15] W.E. Amatucci, M.E. Koepke, T.E. Sheridan, M.J. Alport and J.J. Carroll III, Rev. Sci. Instrum. **64**, 1253 (1993).
- [16] プラズマ診断の基礎, プラズマ・核融合学会編 (名古屋大学出版会, 1990) p.11.
- [17] 雨宮 宏, 坂本雄一: 真空 **28**, 177 (1985).
- [18] G. Wehner and G. Medius, J. Appl. Phys. **23**, 1035 (1952).
- [19] N. Takada, D. Hayashi, K. Sasaki and K. Kadota, Jpn. J. Appl. Phys. **36**, L1702 (1997).
- [20] M. Sato, Phys. Fluids **17**, 1903 (1974).
- [21] 堤井信力: プラズマ基礎工学 (内田老鶴圃, 1986) p.193.