

レビュー論文

負イオンを含む多成分プラズマ中のイオン波伝播特性

河合良信, 吉村信次¹⁾, 眞銅雅子, 市來龍大
(九州大学大学院総合理工学府, 核融合科学研究所¹⁾)

Propagation Characteristics of Ion Waves in Multi-Component
Plasmas with Negative Ions

KAWAI Yoshinobu, YOSHIMURA Shinji¹⁾, SHINDO Masako and ICHIKI Ryuta
Interdisciplinary Graduate School of Engineering Sciences, Kyushu University, Kasuga 816-8580, Japan

¹⁾*National Institute for Fusion Science, Toki 509-5292, Japan*

(Received 26 January 2001 / Accepted 16 May 2001)

Abstract

We reviewed the experiments on ion waves in negative ion plasmas, which waves are produced by introducing SF₆ gas into an Ar gas double plasma. In these experiments, negative ion species are directly measured with a mass spectrometer. It is found that dominant negative ion species depend on the gas flow rate. Further, it is shown that the ion bursts technique is a simple and powerful method by which to identify negative ion species as well as positive ion species. The propagation of an ion wave in a multi-component plasma is attempted.

Keywords:

ion wave, ion burst, ion sheath instability, negative ion plasma, double plasma, mass spectrometer

1. はじめに

近年, プラズマ科学の新しい領域の開拓についてプラズマ・核融合学会年会や核融合科学研究所主催の研究会などで議論されてきた. その中の一つに負イオンプラズマの振る舞いがあげられている. プラズマ基礎分野においては, 負イオンプラズマ中のイオン音波[1-7], およびイオン音波ソリトンの研究が古くから行われている[8-10]. これらの多くの実験では, プラズマ中に負イオンを生成するためにSF₆ガスがよく用いられている[2-10]. この場合, 負イオン種が著者により異なり, 負イオン種がSF₆またはF⁻と仮定されている. この根拠として電子付着断面積が電子温度に依存することが考えられてきた. しかしながら, ダブルプラズマの電子温度領域 (0.4

-1.5 eV)で電子付着反応係数を計算してみると, SF₆の電子付着反応係数がF⁻と比べて圧倒的に大きい. にもかかわらず, 実験ではF⁻と仮定されている. 一方, プラズマCVDやエッチング等のプラズマ応用分野においても負イオンの役割が現在注目されている. すなわち, 反応性ガスプラズマ中に存在する負イオンを積極的に利用しようとする試みがある. しかしながら, 負イオン量の測定法がまだ確立していないため, 負イオンは十分に活かされているとは言いがたい.

我々は, プラズマ中のイオンシース不安定性やイオンバーストの研究をこれまでに行い, 多くの成果を得てきた[11-17]. これらの研究の発展として, 負イオンプラズマ中のイオンシース不安定性やイオンバーストの励起を行

author's e-mail: kawai@ees.kyushu-u.ac.jp

この論文は第17回年会(2000, 札幌)で招待講演として発表された内容を論文化したものです.

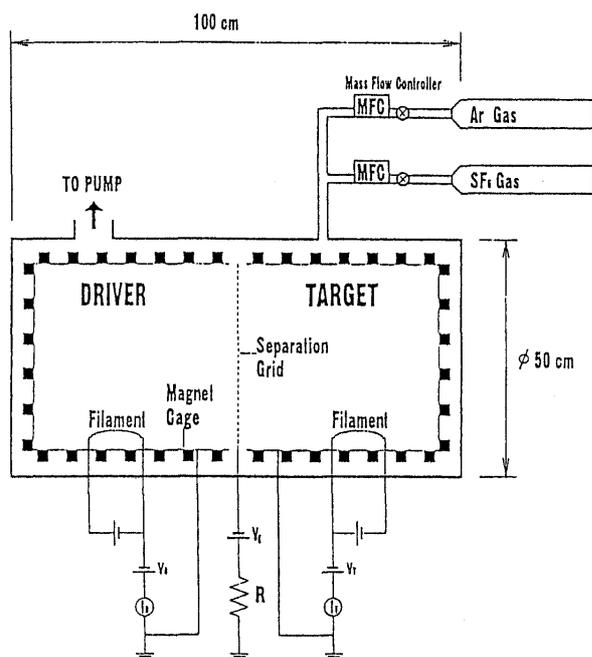


Fig. 1 Schematic diagram of the experimental device used for the ion sheath instability experiments.

い, 興味ある結果を得た. さらに, 質量分析器を用いて実際に負イオンの質量スペクトルを測定し, 負イオン種の同定に成功した. また, ラングミュアプローブのイオン飽和電流がイオン密度 (プラズマ密度) に比例することに着目し, ラングミュアプローブを用いて反応性ガスプラズマ中の負イオン密度を求める新しい負イオン密度測定法を開発した [18, 19]. 現在, 我々はこれらの成果を基に負イオンを含む多成分プラズマ中のイオン波伝播を調べ, いくつかの成果を得ている [20, 21].

2. 実験結果

2.1 イオンシース不安定性

ダブルプラズマ (DP) 装置のセパレーショングリッドの両側に密度差をつけると $f_{pi}/2$ 近傍の振動数を持つイオンシース不安定性が励起されることは古くから知られているが, 不安定性の励起機構は必ずしも明らかではなかった. 我々はセパレーショングリッドの両側周辺に形成されるシースの構造を詳しく調べるとともに, PIC コードによるシミュレーションを行い, イオンシース不安定性の励起機構を明らかにした. さらに負イオンプラズマ中のイオンシース不安定性の振る舞いを調べるために, SF_6/Ar ダブルプラズマ中でイオンシース不安定性の励起を試みた [11-13]. 実験に用いた DP 装置の模式図を Fig. 1 に示す. DP 装置の直径および長さはそれぞれ 50 mm および 1,000 mm である. ガスは Ar と SF_6 の混合ガ

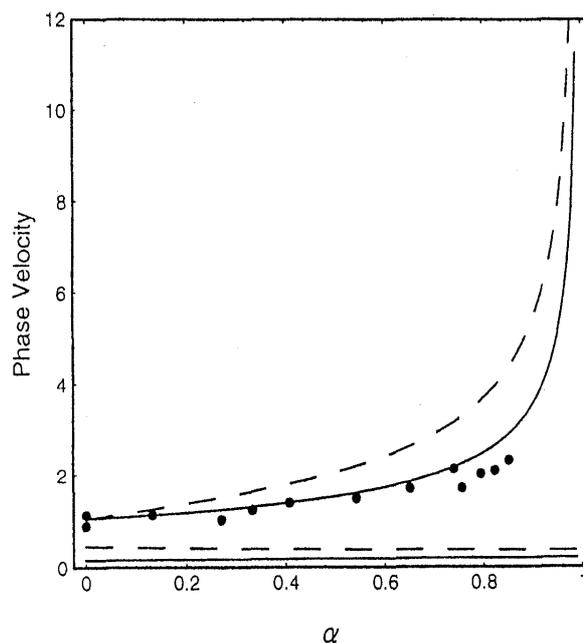


Fig. 2 The dependence of the phase velocity of observed waves on the negative ion density ratio, α . Here, the negative ion density was estimated from the reduction rate of the electron saturation current of the Langmuir probe. The solid and dashed curves are the theoretical ones for the plasma containing SF_6 and F^- as a negative ion species, respectively.

スで, 流量計を用いてガスを真空容器に導入した. 圧力は 1.4×10^{-4} Torr で実験した. セパレーショングリッドは透過率 81% のステンレススチール製のメッシュを使用した. プラズマパラメータは平板ラングミュアプローブにより測定した. 電子密度は $(1-10) \times 10^8 \text{ cm}^{-3}$, 電子温度は 0.5-1.0 eV であった.

まず初めに, 負イオンプラズマ中でイオン音波を励起し, 干渉法により伝播波形を測定して位相速度を求めた. 流体方程式から得られる負イオンプラズマ中のイオン音波の分散関係は次式で与えられる [1].

$$1 - \alpha = \frac{1}{V_{ph}^2 - T} + \frac{\alpha}{\mu V_{ph}^2 - T}$$

ここで, α は負イオン密度比 $n-/n_+$, V_{ph} はイオン音波速度で規格化された位相速度, $T = T_i/T_e$, $\mu = m-/m_+$ である. 上式からわかるように, 負イオンプラズマ中ではイオン音波は Fast モードと Slow モードの 2 つの波が存在する. しかし, Slow モードはランダウ減衰が強い [13] ので, 通常 Fast モードが主に観測される. Fig. 2 に観測された波動の位相速度の負イオン密度比依存性を示す. この場合, 負イオン密度比はプローブの電子飽和電流の減少率から求めた. また, $T_e = 1 \text{ eV}$ であった. Fig. 2 から,

実験値が負イオン種として SF_6^- を仮定した場合の Fast モードの理論値 (実線) に良く合っていることがわかる。

次に、セパレーショングリッドに負バイアス電圧 V_g を印加して負イオンプラズマ中のイオンシース不安定性を励起した。観測された不安定性の振動数および振幅のバイアス電圧 V_g 依存性を Fig. 3 に示す。Fig. 3 からわかるように、負イオン密度比が増加すると振動数が減少する。これは負イオンが存在すると電子の遮蔽効果が弱まりイオンシースが厚くなるためであると考えられる。また、不安定性の振幅が減少し不安定領域が狭くなる。これらのことはまだ理解されていない。

2.2 イオンバーストを用いたイオン種測定を試み

イオンバーストは古くから研究されているが、負イオンプラズマ中ではあまり研究されていない。我々はバーストの速度がイオン種の質量の関数であることに着目し、 SF_6/Ar ダブルプラズマ中のイオン種を求めた[14]。また、負イオンのバーストを励起することにより負イオン種を求めた[15-16]。

実験装置は Fig. 1 とまったく同じであるが、イオンバーストを励起するために、Fig. 4 に示すように、直径 80 mm のメッシュグリッドを挿入して、これにパルス電圧 (パルス幅 1.64 μs) を加えた。イオンバースト信号は直径 80 mm のメッシュグリッドによりイオン飽和電流の揺動として受信し、速度は time-of-flight 法を用いて求めた。この場合の電子密度および電子温度は $10^8 cm^{-3}$ および 0.4 eV である。 SF_6 ガス流量が異なる場合のイオンバーストの受信信号を Fig. 5 に示す。ここでイオンバーストを励起するために負の矩形パルス電圧 ($V_0 = -10 V$) を用いた。 SF_6 ガスを混合しない場合は Ar イオンに相当するイオンバーストのみが観測される (Fig. 5 (a))。一方、 SF_6 ガス流量 0.04 sccm の場合は複数のバーストが励起される。イオンバーストの速度が $(2e|V_0/m_i)^{1/2}$ で与えられると仮定してイオン種を求めると、Fig. 5 (b) のピークはそれぞれ Ar^+ , SF_3^+ , SF_5^+ に対応している。4 番目のピークについてはまだ明らかではない。

次に、メッシュグリッドに正の矩形パルス電圧を印加することで負イオンバーストの励起を試みた。観測した負イオンバースト信号を Fig. 6 に示す。ここで、パルス幅および電圧はそれぞれ 100 μs , +60 V である。Fig. 6 より、2 つの異なる速度をもった信号が同時に励起されていることがわかる。この場合のイオン種を求めると、速い信号が F^- 、遅い信号が SF_6^- イオンに対応している。結果として、 SF_6/Ar ダブルプラズマ中に 2 種の負イオン

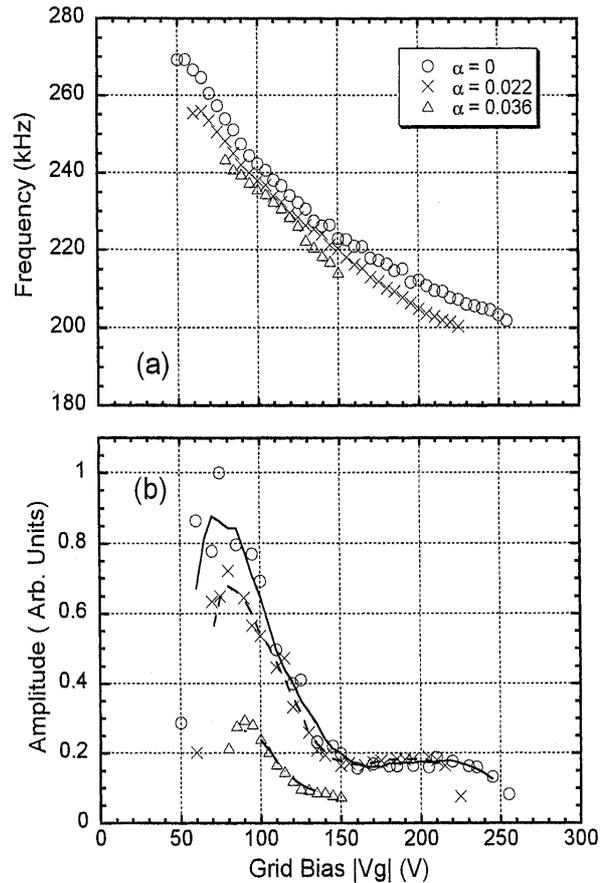


Fig. 3 Dependence of (a) frequency and (b) amplitude of the coherent oscillation of the separation grid current on the bias voltage V_g for various α .

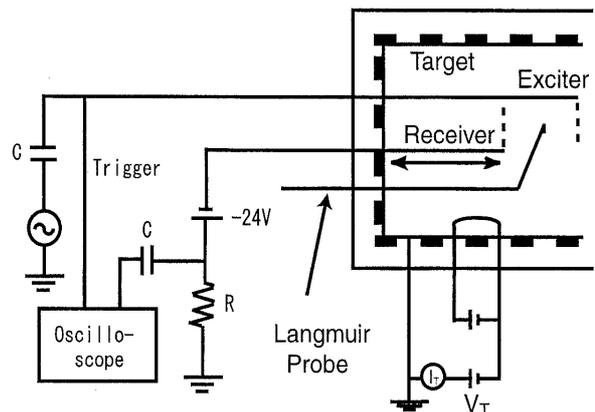


Fig. 4 Schematic diagram of the experimental set up used for the ion burst experiments.

ンが同時に存在していることが明らかになった。今回は、非常に大きな幅のパルスを用いて負イオンバーストを励起することができたが、その理由は負イオンバーストの励起機構とともに現在研究中である。

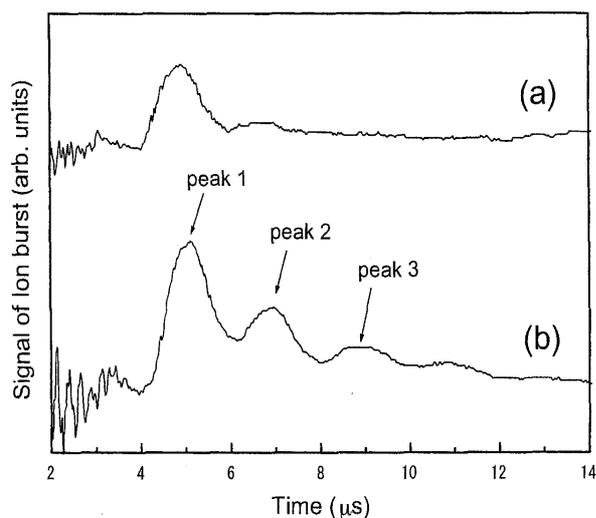


Fig. 5 Typical examples of the observed ion-bursts signals when the gas flow rate of SF_6 was (a) 0 sccm and (b) 0.04 sccm. Peak 1, 2 and 3 in (b) indicate the bursts of Ar^+ , SF_3^- and SF_5^- , respectively.

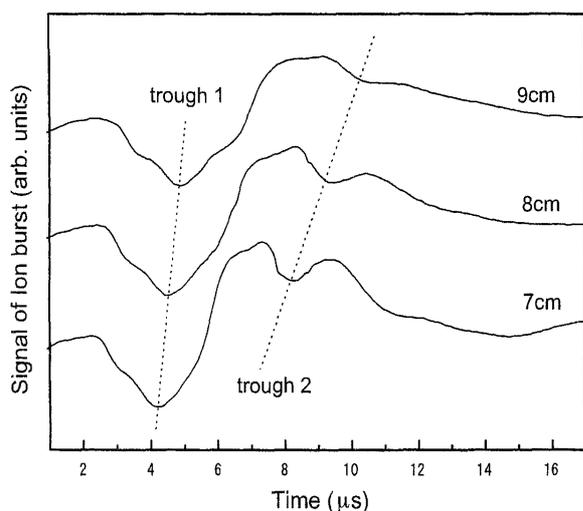


Fig. 6 Observed signals of negative ion-bursts at different distances from the excitation grid. Trough 1 and 2 correspond to the bursts of F^- and SF_6^- , respectively. Here the gas flow rate of Ar and SF_6 are 4.0 sccm and 0.001 sccm, respectively ($\alpha=0.5$).

2.3 質量分析器によるイオン種測定

我々は実際に SF_6/Ar ダブルプラズマ中のイオン種を四重極質量分析器 (Hiden EQP 500) を DP 装置の一端に取り付けて測定した [13]. Fig. 7 に測定された負イオンの質量スペクトルの一例を示す. 次に, F^- および SF_6^- イオンに対するスペクトル強度比のガス流量依存性を Fig. 8 に示す. この結果, 上で述べたように, ガス流量とともに主な負イオン種が F^- から SF_6^- になることがわかった. 2 種の負イオンが SF_6/Ar ダブルプラズマ中に

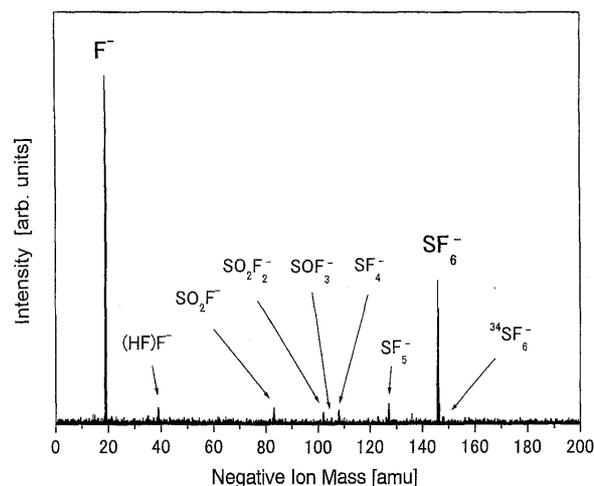


Fig. 7 Typical negative ion mass spectrum for SF_6/Ar plasma produced in the DP device, where the gas flow rate of Ar and SF_6 are, respectively, 8.0 and 0.02 sccm ($\alpha=0.67$).

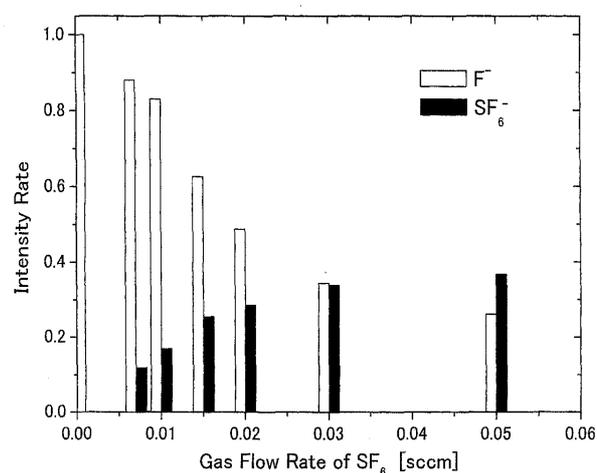


Fig. 8 The dependence of the mass spectrum intensity rate of F^- and SF_6^- on the gas flow rates of SF_6 .

同時に存在するというこの結果は, イオンバーストによるイオン種測定と定性的に一致する.

以上の結果から, SF_6 ガスの流量により負イオン種が F^- から SF_6^- になることが見出された. この場合, 電子温度はわずかに増加する傾向にあったが, ほぼ変化しないと考えてよい. すなわち, この実験における電子温度領域での電子付着反応係数はほとんど変わらない. 負イオン種がガス流量に依存することは, 流量が少ない場合はガスの滞在時間が長いために解離が進み, 主な負イオン種が F^- となる, 流量が多い場合は SF_6 に電子が付着するため SF_6^- になると理解される.

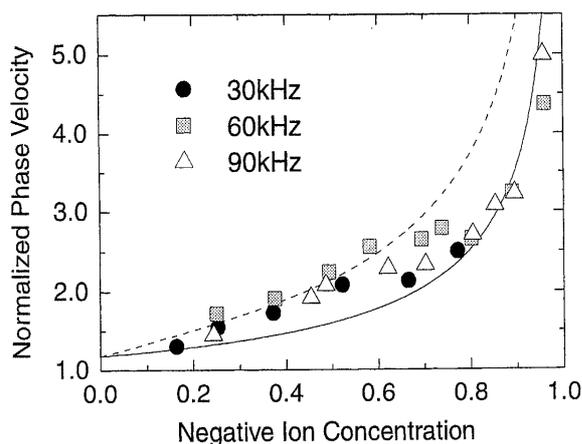


Fig. 9 The dependence of the phase velocity of the ion acoustic wave on the negative ion density ratio, α . The solid and dashed curves are, respectively, the theoretical ones for the plasma containing SF_6 and F^- as a negative ion species.

2.4 負イオンを含む多成分プラズマ中のイオン音波伝播

上述した結果から、 SF_6/Ar ダブルプラズマ中でイオン音波を伝播させれば、 F^- と SF_6^- がともに伝播特性に効く負イオン密度比領域があると予想される。そこで我々は、2.3節で用いたプラズマ中にメッシュグリッドを挿入し、正弦波電圧 ($\omega < 0.1\omega_{pi}$ [ω_{pi} : イオンプラズマ振動数]) を印加することによりイオン音波を励起し、様々な負イオン密度比に対して観測を行った[20]。

Fig. 9 にイオン音波速度の負イオン密度比依存性を示す。ここで実線および破線はそれぞれ、負イオン種に SF_6^- および F^- を仮定した時の、負イオンプラズマ中の Fast モードの理論値である。負イオン密度比の小さな領域において実験値は破線に良く一致しているが、負イオン密度比の増加とともに徐々に破線を離れ、実線の方にシフトしている。2.3節の質量分析器の結果と併せて考えると、 SF_6^- の密度比の増加に伴い、イオン音波の分散関係には F^- のみならず SF_6^- の効果が強くなっていることがわかる。

2.1節において負イオンプラズマ(2成分イオンプラズマ)中には2つのイオン音波モードが存在することを示したが、同様に3成分イオンプラズマ中では3つのイオン音波モードが存在する。そして理論との比較により、ここで観測されたイオン音波は、それら3つのモードのうち、最も減衰率の小さなモードであることが新たにわかった[21]。この実験は、過去に行われた多種イオンプラズマ中のイオン音波の研究をさらに発展させたものとして価値があると言える。

3. 終わりに

負イオンを含んだ SF_6/Ar ダブルプラズマ中のイオン波伝播を調べた結果、 SF_6/Ar プラズマは多成分プラズマの一例として研究する価値があると判断される。今後はプラズマ応用で重要なガスである SiH_4 や C_4F_8 などの反応性ガスプラズマについても調べていく必要がある。これらの反応性ガスプラズマ中には負イオンが大量に生成され、プロセスを左右する。プラズマ CVD においては、負イオンの生成によって電子密度が減少し、いわゆる「ガス枯れ」現象が生じて成膜速度が減少する懸念がある。さらにプラズマエッチングでは、基板のチャージアップを低減させるために負イオン照射が試みられている。にもかかわらず負イオン種や密度についての測定例は少ない[18, 19]。プロセスプラズマを多成分負イオンプラズマとして捉えるならば、本論文で述べたイオン波伝播に関する研究が、プラズマ応用の分野でも威力を十二分に発揮すると考えられる。筆者らはまず、プロセス用高密度 ECR プラズマ中の負イオン密度比をイオン音波の位相速度から評価することに成功している[22]。

また、イオンバーストの形状はシース構造を反映していると考えられるので、シース構造の研究に利用できるものと期待される。広く知られているように、負イオンプラズマ中ではシース構造が大きく変化するため、プローブの I-V 曲線の解析に困難が伴う。一方、プラズマ応用分野においては、シース内でのイオン加速をコントロールすることが重要であり、シースポテンシャル構造の解明が最重要課題となっている。さらに、反応性ガスの多くはプローブ電極表面に膜を堆積させるため、反応性ガスプラズマ中での新たなパラメータ測定法の確立も望まれている。

最後に、質量分析器による負イオン種の測定に貢献した古閑一憲氏および内野 聡氏に感謝する。

参考文献

- [1] N. D'Angelo, S.v. Goeler and T. Ohe, Phys. Fluids 3, 1605 (1966).
- [2] A.Y. Wong, D.L. Mamas and D. Arnush, Phys. Fluids 18, 1489 (1975).
- [3] T. Intrator and N. Hershkowitz, Phys. Fluids 26, 1942 (1983).
- [4] B. Song, N. D'Angelo and R.L. Merlino, Phys. Fluids B 3, 284 (1991).
- [5] N. Sato, Plasma Sources Sci. Technol. 3, 395 (1994).
- [6] Y. Nakamura, T. Odagiri and I. Tsukabayashi, Plasma Phys. Control. Fusion 39, 105 (1997).

- [7] B. Handique, H. Bailung, G.C. Das and J. Chutia, *Phys. Plasmas* **6**, 1636 (1999).
- [8] G.O. Ludwig, J.L. Ferreira and Y. Nakamura, *Phys. Rev. Lett.* **23**, 275 (1984).
- [9] K.E. Lonngren, *Opt. Quantum Electron.* **30**, 615 (1998).
- [10] Y. Nakamura, H. Bailung and K.E. Lonngren, *Phys. Plasmas* **6**, 3466 (1999).
- [11] K. Koga and Y. Kawai, *J. Phys. Soc. Jpn.* **68**, 1578 (1999).
- [12] K. Koga, H. Naitou and Y. Kawai, *Jpn. J. Appl. Phys.* **38**, 1553 (1999).
- [13] K. Koga, H. Naitou and Y. Kawai, *Frontiers in Dusty Plasmas*, ed. Y. Nakamura, T. Yokota and P.K. Shukla (Elsevier Science, Amsterdam, 2000) p. 413.
- [14] S. Yoshimura, Y. Nakamura, T. Watanabe and Y. Kawai, *J. Phys. Soc. Jpn.* **66**, 3842 (1997).
- [15] S. Yoshimura and Y. Kawai, *Jpn. J. Appl. Phys.* **37**, L248 (1998).
- [16] S. Yoshimura, M. Yohen and Y. Kawai, *Frontiers in Dusty Plasmas*, ed. Y. Nakamura, T. Yokota and P.K. Shukla (Elsevier Science, Amsterdam, 2000) p. 381.
- [17] S. Yoshimura, R. Ichiki, M. Shindo and Y. Kawai, *Thin Solid Films* **390**, 212 (2001).
- [18] M. Shindo, S. Hiejima, Y. Ueda, S. Kawakami, N. Ishii and Y. Kawai, *Thin Solid Films* **345**, 130 (1999).
- [19] M. Shindo, S. Hiejima, Y. Ueda, S. Kawakami, N. Ishii and Y. Kawai, *Surface and Coatings Technology* **116-119**, 1065 (1999).
- [20] R. Ichiki, M. Shindo, S. Yoshimura, K. Koga and Y. Kawai, *J. Phys. Soc. Jpn.* **69**, 1925 (2000).
- [21] R. Ichiki, M. Shindo, S. Yoshimura, T. Watanabe and Y. Kawai, *Proc. 2000 Int. Conf. Plasma Phys.* (Quebec, Oct. 2000) p.144.
- [22] M. Shindo and Y. Kawai, *J. Phys. Soc. Jpn.* **70**, 621 (2001).