

Research Reports of the National Institute
of Industrial Safety, NIIS-RR-94(1995)
UDC 537.525

プラズマプロセスに用いられるRF放電の放電モード移行現象の観測

大澤 敦^{*}, 田島泰幸^{*}

Investigation of Transition of Discharge Modes in Radio Frequency Discharge Used in Plasma Processing

by Atsushi OHSAWA^{*} and Yasuyuki TABATA^{*}

Abstract : Capacitively coupled radio frequency (RF) discharges have been widely used in industrial applications, e.g., fabrication of microelectronic devices, gas lasers and decomposition of pollution gases, because the discharges provide higher energy electrons and ions, excited atoms and molecules and radical species, then they lead to high temperature chemistry at low gas temperature. However, the understanding of the mechanisms of discharge sustaining and chemical reaction in the process is not rich. A great deal of knowledge of the mechanisms is essential for optimized and safety control of the discharges.

In this paper, the electron temperature, the electron density, the electron energy distribution function (EEDF), the light emission and the DC self-bias voltage in argon RF discharges for frequencies of 5, 9 and 13.56 MHz, RF voltage amplitude up to 1600 V and a pressure of 0.4 Torr have been measured to investigate the discharge transition from low RF voltage (α) to high RF voltage (γ) mode. When the transition occurs, these measured characteristics changes dramatically. The changes show the existence of two distinct discharge modes. Probe measurements showed the transition was accompanied by a sharp drop in the electron temperature, a sharp rise in the electron density and a decrease of higher energy region in the EEDF. Optical emission spectroscopy also showed the existence of two discharge modes which drastically changed in the light emission spectra and axial distribution of the light emission. In the high voltage mode, it was found that the axial distribution consisted of the light emissions caused by a direct excitation and a recombination, while the direct excitation was a main process in the low voltage mode. The DC self-bias voltage as a function of RF voltage amplitude also changed, when the sheath voltage of the driven electrode achieved a sustaining voltage for a DC normal glow discharge.

These results emphasize that users of the discharge must pay attention to the distinct different discharge modes for an optimum and safety control of the plasma processes.

Keywords ; RF glow discharge, α and γ modes (discharges), Electron temperature, Electron density, Electron energy distribution function, Optical emission spectroscopy, DC self-bias voltage.

1. まえがき

放電プラズマの産業分野における応用は半導体等の電子材料のプラズマプロセッシング、ガスレーザ装置、有害ガス処理など多岐にわたっている。このように放電プラズマ（非平衡プラズマ）が種々の処理および装置に利用される理由は、放電プラズマ中に高エネルギーの電子、イオン、励起原子・分子および各種ラジカルが豊富に存在するからである。これらの高いエネルギーをもった電子、イオンおよび中性粒子を放電プラズマ処理では積極的に利用しているものであり、これらにより放電プラズマは通常では困難な高温化学反応を低ガス温度でも容易に促進することができる。しかしながら、それら放電プラズマの維持機構、ダイナミック特性およびその気相・表面反応機構等は、いまだ十分に解明されていないところが多い。そのため、放電プラズマを応用した装置は経験則に基づいて稼働しているのが実状であり、十分な制御が実施されているとはいえない。その結果、たとえばプラズマリアクタ中

にホットポイントが発生すると、装置の破損等のトラブルが生じており、稼働効率、安全面等からの基礎的解明が望まれている。それとともに、それらの放電の基礎過程に関する研究の必要性も高まっている。

容量結合型の高周波 (RF) 放電に全く異なった二つの放電モードが存在することが知られており、この放電モードの存在は、Levitskii¹⁾の絶縁破壊に関する研究によって初めて指摘されている。この二つの放電モードは電離過程の違いにより^{1),2)}、タウンゼントの第一および第二電離係数に関連づけて α 放電および γ 放電と名付けられている¹⁾。低電力で起こる α 放電は主にプラズマ内の電離によって放電が維持され、さらに電力が大きくなると、ある点で放電は γ 放電へと移行し、この γ 放電はDC放電の負グローの特性と類似することが知られている。

このように同じRF放電でも特性の異なるモードが存在するので、この異なった二つのタイプの放電を定量的に解明することは、RF放電を用いた種々のプラズマ装置の最適化と安全制御に役立つと推察される。

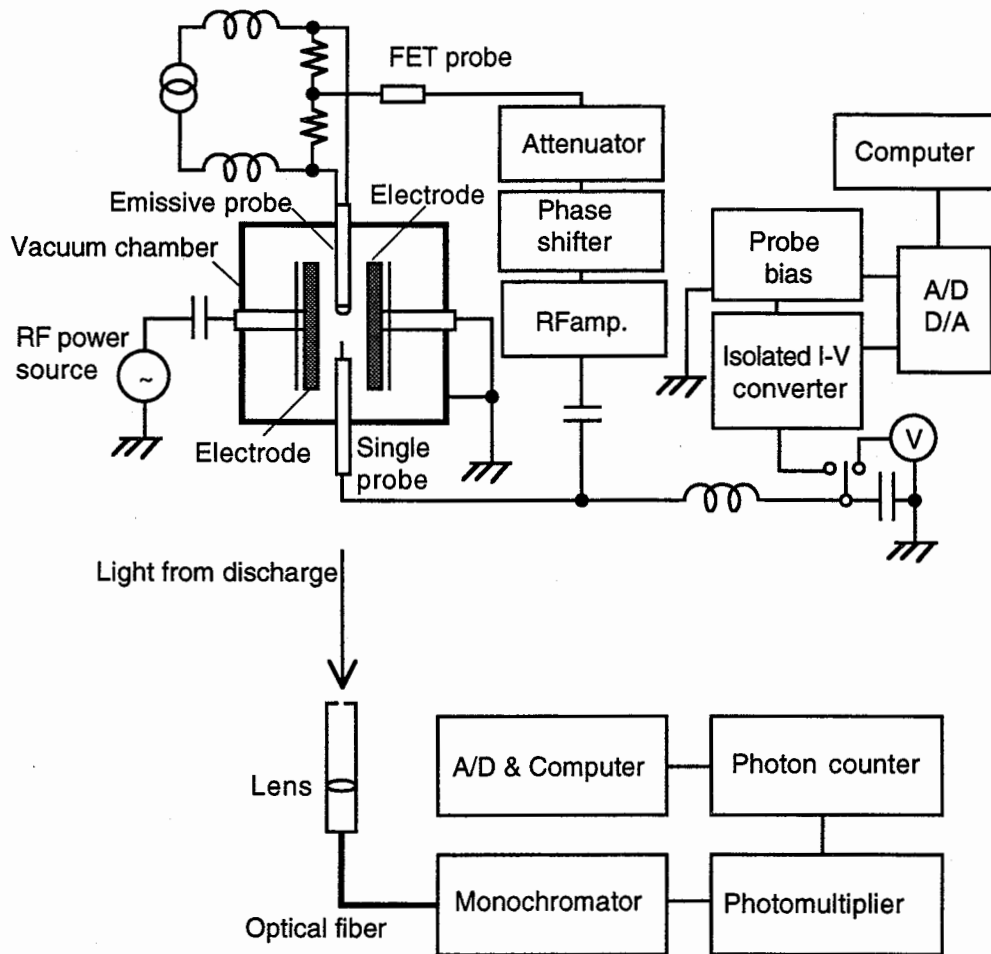


Fig. 1 Schematic diagram of experimental apparatus.
実験装置の概略図

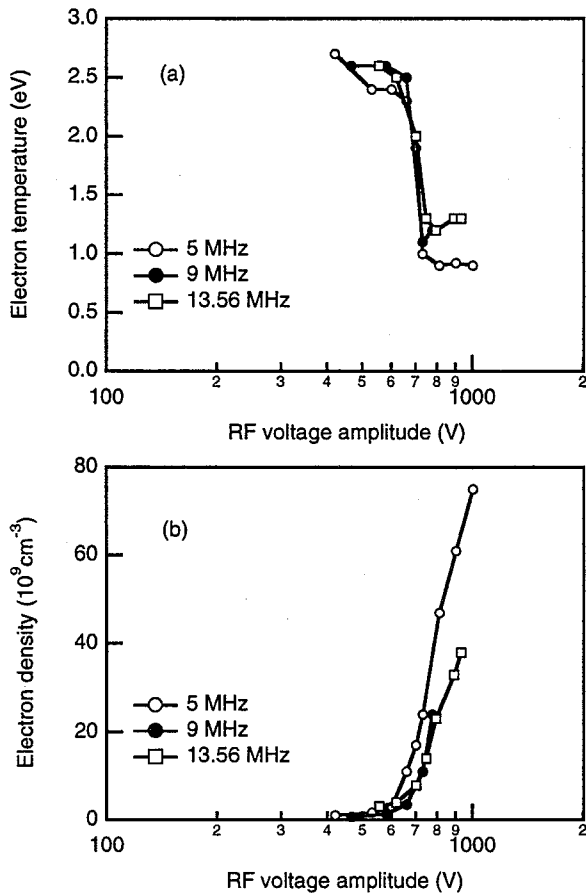


Fig. 2 Electron temperatures and electron densities in argon as a function of RF voltage amplitude for different frequencies and a pressure of 0.4 Torr at the center of the gap.
RF電圧振幅に対する電子温度および電子密度の変化 (周波数5,9および13.56MHz, アルゴン0.4Torr, 測定位置は電極間の中心)

以上のような背景から、ここではプラズマプロセスの基礎的現象を解明するため、RF放電の放電モードの移行現象に着目し、これに関与する電子温度、電子密度、電子エネルギー分布、発光スペクトル、発光の軸方向分布および電極の自己バイアス電圧の影響等について実験的に観測した。

2. 実験

Fig. 1に本研究に用いた測定装置の概略図を示す。放電を生成させる真空チェンバは高さ280mm, 直径300mmのステンレス製の円筒であり, 分光測定のため, 石英の窓がマウントされている。電極は直径100mmのニッケル製の平行円板であり, 電極間隔は20mmである。電子温度, 密度およびエネルギー分布測定に用いるシングルプローブは長さ2mm, 直径0.1mmのプラチナ線であり, 空間電位測定用のエミッシブプローブは直径0.05mmのタングステン線をヘアピン状に

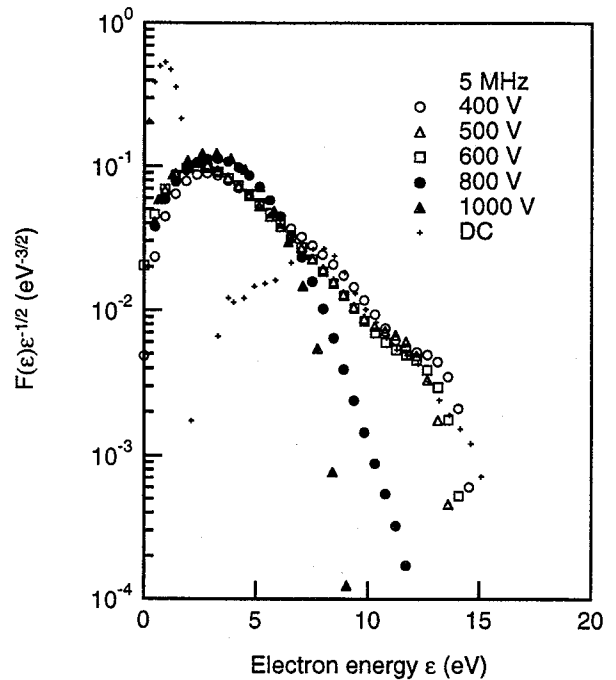


Fig. 3 Electron energy distribution functions, $F(\epsilon)$, in argon for different RF voltage amplitude, a frequency of 5 MHz and a pressure 0.4 Torr at the center of the gap.
RF電圧振幅に対する電子エネルギー分布の変化 (周波数5 MHz, アルゴン0.4Torr, 測定位置は電極間の中心)

したものである。これらのプローブは同電位になるように電極面に平行な同一平面上に15mmの間隔で配置されている。放電励起電源はDCブロッキングキャパシタを通して一方の電極に接続され, 他方の電極およびチェンバは接地されている。したがって, 放電は駆動電極面積の方が小さい非対称容量結合型放電である。

ここで用いたプローブ法は空間電位がRF変動している場合, その空間電位の変動と同一かつ同期した信号をプローブに印加し, プローブとプラズマ間の電位変動の影響を除去する方法である³⁾。

分光測定では, 放電からの発光をスリット, レンズおよび光ファイバを通して分光器に導き, フォトマルチプライアおよび光子カウンタを用いて観測した。

測定条件はアルゴン0.4Torr一定で, 周波数は5, 9および13.56MHzであり, RF電圧振幅を変化させ, 各々の測定を行った。

3. 結果

3.1 電子温度, 電子密度および電子エネルギー分布

Fig. 2 (a), (b)にRF電圧振幅に対する電子温度および電子密度の変化を示す。また, Fig. 3にRF電圧振

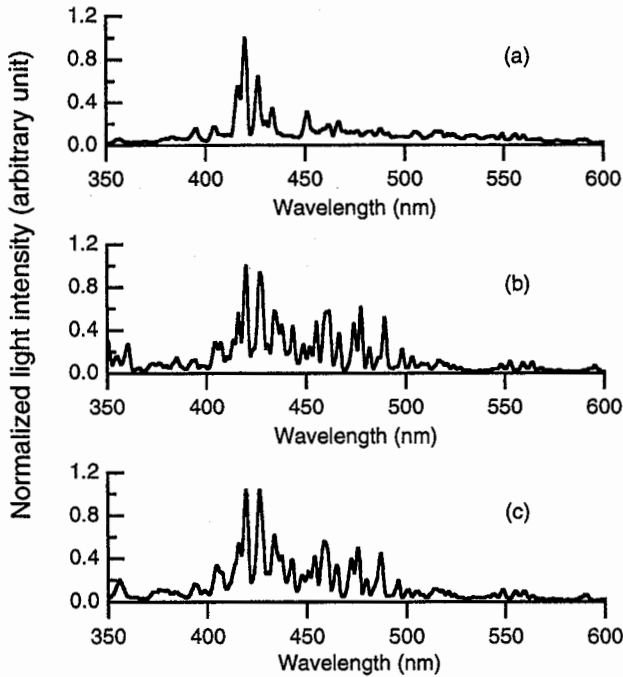


Fig. 4 Optical emission spectra of argon discharges for a frequency of 5 MHz and a pressure of 0.4 Torr at the center of the gap, (a) low RF voltage (α) mode, 400 V, (b) high RF voltage (γ) mode, 1000 V and (c) DC discharge. RF電圧振幅に対する発光スペクトルの変化 (a) 低RF電圧 (α) モード, (b) 高RF電圧 (γ) モード, (c) DC放電 (周波数 5 MHz, アルゴン 0.4 Torr, 測定位置は電極間の中心)

幅に対する電子エネルギー分布の変化を示す。なお、これらの測定は電極間の中心で行われた。

電子温度はRF電圧振幅が比較的低いとき (α モード) はほぼ 2.5eV 一定で、RF電圧振幅が増加すると 720 V 付近で急激に下がり、それ以上の高いとき (γ モード) はほぼ 1eV 程度で一定となる二つの放電モードに分かれた (Fig. 2 (a))。一方、電子密度はその遷移域付近で急激に増加した (Fig. 2 (b))。また周波数に関しては、電子温度は周波数が高いほどわずかであるが高く、電子密度は周波数が低いほど高くなった。

電子エネルギー分布関数はRF電圧振幅の増加に従って、電子が高エネルギー部に多く存在する分布から低エネルギー部に多く存在する (高エネルギー部が減少した) 分布へと移行した (Fig. 3)。比較のため、DC放電の正規グロー (3 mA, 280V) の電子エネルギー分布関数も Fig. 3 に示した。

この放電モードの移行は周波数に依らず、RF電圧振幅が 720V 付近で起こった。また、RF電圧振幅を放電モードの遷移域付近の電圧に保持していると、フリップフロップのように二つの放電モードを行き来し、放電が不安定になることも観測された。

これらの電子温度、電子密度および電子エネルギー分布の測定結果は、明らかに二つの放電モードが存在することを示しており、それらはそれぞれの放電モードにおいて放電維持機構が異なっているためであると推測される。

RF電圧振幅が低いときに電子温度が高いあるいは高エネルギー電子が存在することは、電子が電離によって生成される位置でその電子をその程度まで加速する電界が存在していることを示唆しており、この結果は測定が行われた電極間の中心付近 (プラズマ内) でも高電界が存在していることを裏付けている。すなわち、RF電圧振幅が低いときの放電モードでは、プラズマ内の高電界によって電子が十分なエネルギーを得ることができ、それにより放電を維持していると考えられる。

一方、RF電圧振幅が高いとき、放電の中心付近の電子温度は低くなり、高エネルギー電子が減少しているにもかかわらず、電子密度がその遷移域付近で急激に高くなることは、電離が生ずる (高エネルギー電子が存在する) 領域が他の場所 (駆動電極シース近傍) にあることを示している。

このような電子に対する特性は Godyak ら⁴⁾ にもよっても報告され、ほぼ同様な結果が得られている。

3.2 発光分光分析

放電発光からも二つの放電モードが観測でき、放電モードの移行に伴い、その放電発光の色が変化し、発光形態も全く異なったものとなった。

Fig. 4 に電極間の中心付近からの発光強度を 419.8 nm ($4s[3/2] - 5p[1/2]$) のそれで正規化した発光スペクトル分布を示す。発光スペクトルはRF電圧振幅が低いときの放電モードでは Fig. 4 (a) に示すスペクトル分布となり、RF電圧振幅が高いときの放電モードでは Fig. 4 (b) に示すスペクトル分布となった。RF電圧振幅が高いときのスペクトル分布は Fig. 4 (c) に示すDC放電のスペクトル分布とよく一致している。この発光スペクトル分布が遷移する電圧は電子温度が急激に低下する電圧、電子密度が急激に高くなる電圧および電子エネルギー分布の高エネルギー部が減少し始める電圧にほぼ一致していた。

Fig. 5 に周波数 5 MHz のときのRF電圧振幅に対する 419.8nm の軸方向発光分布を示す。電子温度、電子密度、エネルギー分布関数および発光スペクトルによって観測された放電モードが移行する点において発光分布の形が変化し、RF電圧振幅が低いときは一つのピークを持つ分布であるのに対して、RF電圧振幅が高いときは二つのピークが現れ、RF電圧振幅の増加に従い、

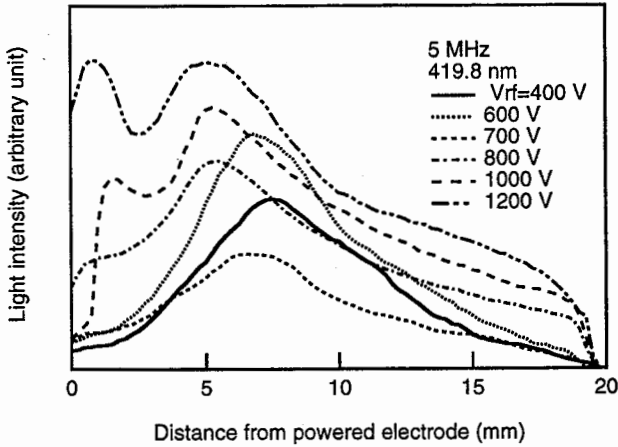


Fig. 5 Axial distribution of light emission at 419.8 nm, for different RF voltage amplitude, a frequency of 5 MHz and a pressure of 0.4 Torr. RF電圧振幅に対する軸方向発光スペクトルの変化 (419.8nm, 周波数 5 MHz, アルゴン0.4 Torr)

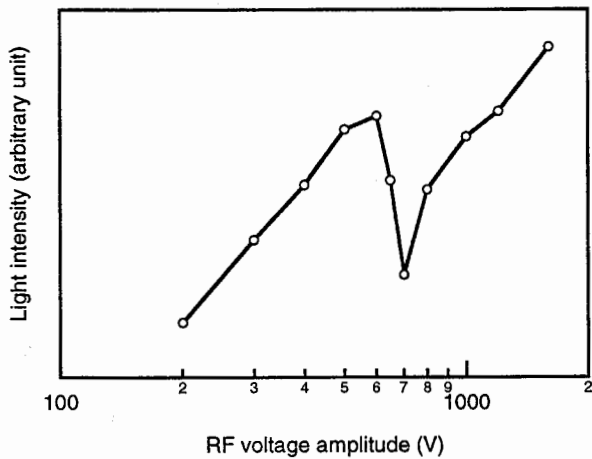


Fig. 6 Light emission intensity of 4s [3/2]-5p[1/2] at 419.8 nm as a function of RF voltage amplitude for a frequency of 5 MHz and a pressure of 0.4 Torr at the center of the gap. RF電圧振幅に対する発光スペクトル強度の変化 (419.8nm, 周波数 5 MHz, アルゴン0.4Torr, 測定位置は電極間の中心)

駆動電極側の発光強度のピークが大きくなった。このRF電圧振幅が高いときの駆動電極側の発光のピークはRFシース電界によって加速された電子衝突励起による発光であると推定される。また、もう一方のプラズマ側の発光のピークについては、RF電圧振幅が高いときの放電モードで高エネルギー電子が減少している測定結果に合わせて考察すると、直接励起は支配的ではないと考えられる。再結合係数は電子温度の2乗あるいはそれ以上の逆数のべき乗に逆比例することから (たとえば、 $T_e^{-1/2}$ に比例する。ここで、 T_e は電子温度)、アルゴンイオンの再結合が支配的になったためと

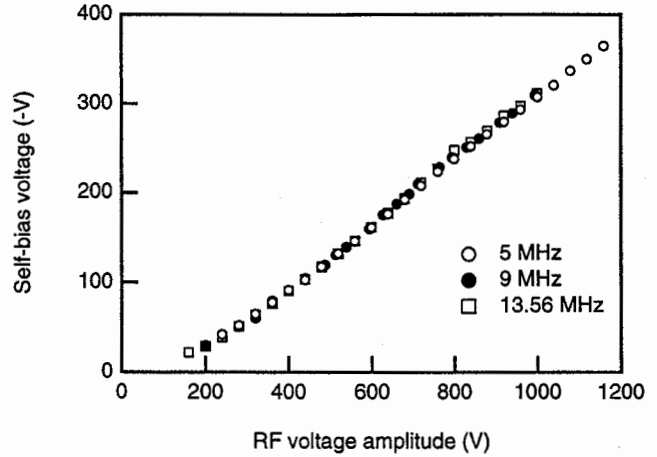


Fig. 7 DC self-bias voltage of the powered electrode as a function of RF voltage amplitude for different frequencies and a pressure of 0.4 Torr. RF電圧振幅に対するDC自己バイアス電圧 (周波数5,9および13.56MHz, アルゴン0.4Torr)

推察される。すなわち、電子温度が1.0eV程度と比較的低いことから、このプラズマ側の発光のピークは再結合発光が支配的であると考えられる。

このような二つのピークを持つ発光分布は比較的電子温度が低いDC放電でも観測されており、DC放電における同様な現象は再結合によって生起すると説明されている⁵⁾。

Fig. 6に周波数5 MHzのときの電極間の中心からの419.8nmの発光スペクトル強度のRF電圧振幅の依存性を示す。この発光強度はRF電圧振幅の増加に従って高くなり、放電モードが移行する付近でいったん下がりが、その後再び高くなった。このように発光強度が変化することは二つの放電モードで発光のメカニズムが異なることを示している。RF電圧振幅が低いときの発光強度の上昇は直接励起の増加によるものであり、放電モードが移行するとともに電子温度および高エネルギー電子が急激に減少することから、直接励起が減少することにより、発光強度がいったん減少するが、その後の発光強度の増加は、先にも示したように、電子温度の低下と急激な電子密度の増加による再結合発光が増加したためであると考えられる。

3.3 自己バイアス電圧

Fig. 7にRF電圧振幅に対する駆動電極の自己バイアス電圧の変化を示す。この特性にもRF電圧振幅が720V以降においてわずかな特性の変化がみられた。このときのRF電極シース電圧 (自己バイアス電圧250Vとプラズマ電位25Vとの和) はDC放電の測定からDC放電の正規グローの陰極降下電圧 (275V) とよく一致

していることがわかった。DC放電の放電維持機構は陰極からのイオン衝撃による二次電子が陰極シースで加速され、それにより電離が促進する過程が重要であることが知られているが、RF放電においても電極シース電圧がDC放電を維持する電圧に近づくと、二次電子の作用が開始し、これにより維持される放電へと移行し、測定結果で示されたような放電モードの移行が生じていると考えられる。

4. むすび

プラズマの安全制御の目的から、放電モードの移行現象を電子温度、電子密度、電子エネルギー分布関数、発光スペクトルおよびDC自己バイアス電圧の測定から実験的に観測し、それぞれの放電モードの特性を調べた。

観測結果によると、RF放電には明らかに二つの放電モードが存在し、その遷移には急激な電子温度の低下、電子密度の上昇、高エネルギー電子の減少および発光スペクトル、自己バイアスの特性の変化が伴った。このような放電モードの移行が起こるRF電極シース電圧は、DC放電の正規グローの陰極降下電圧とよく一致していることがわかった。また、 γ モードの軸方向発光分布は電子衝突による直接励起だけでなく、再結合による発光も含まれていることが予測された。

これら二つの放電モードは、プラズマ内にまで電界が浸透し、その電界によって電子が加速され、それにより放電が維持されるモード (α モード) とDC放電の放電機構と同様に、電極からの二次電子が電極シース

電界によって加速され、それにより放電が維持されるモード (γ モード) に分かれることがわかった。

本研究結果は、各種プラズマ処理の効率化および安全制御を考えるとき、放電モードの移行現象および二つの放電モードを考慮しなければならないことを示唆している。

参考文献

- 1) Levitskii, S.M., An investigation of the breakdown potential of a high-frequency plasma in the frequency and pressure transition regions, *Sov. Phys. Tech. Phys.*, 2 (1957) 887.
- 2) Raizer, Y.P., *Gas discharge physics*, (1991), 387, Springer-Verlag.
- 3) Ohsawa, A., Ohuchi, M. and Kubota, T., Improved RF-driven probe method for RF discharge plasma diagnostics, *Meas. Sci. Technol.*, 2 (1991) 801.
- 4) Godyak, V.A., Piejak, R.B. and Alexandrovich, B. M., Evolution of the electron-energy-distribution function during rf discharge transition to the high-voltage mode, *Phys. Rev. Lett.*, 68 (1992) 40.
- 5) Kubota, T., Morisaki, Y., Ohsawa, A., and Ohuchi, M., The axial distributions of optical emission and metastable density: comparison between experiments with DC and RF helium glow discharges, *J. Phys. D: Appl. Phys.*, 25 (1992) 613.

(平成7年4月28日受理)