



### 3. 低温プラズマのシミュレーション事例

#### 3. Simulation Examples of Low-Temperature Plasma

##### 3.2 流体モデルによるプロセスプラズマシミュレーション

##### 3.2 Processing Plasma Simulation Using Fluid Model

池田 圭

IKEDA Kei

株式会社アテナシス

(原稿受付：2017年5月11日)

流体モデルを利用したプラズマシミュレーションの適用事例として、半導体製造プロセスへの応用例を2例紹介する。一つは、半導体製造装置でしばしば利用されるガス分散板（シャワーヘッド）の孔に着目し、その孔の出口近傍でプラズマが局所的に増幅されていることを見出し、シャワーヘッドが損傷する原因の究明へと繋がった例である。もう一つは、プラズマCVDプロセスへの応用例であり、従来知られているプロセスガスにArを加えると同時に、ステージに接続されたインピーダンスを調整することによって、基板に入射するエネルギーを制御し、堆積する膜のステップカバレッジの向上と低抵抗化の両方を同時に達成した。どちらの事例もプラズマシミュレーションが製品開発への指針となった実用的な例である。

#### Keywords:

plasma simulation, fluid model, semiconductor, etching, chemical vapor deposition, showerhead

#### 3.2.1 はじめに

半導体製造プロセスは、デバイスを作成する過程で必要となる微細加工の高精度化と基板サイズの大型化にともない、従来構造の延長上にある装置開発から、シミュレーションを活用したより効率的な装置開発へとシフトしてきている。解析対象も多岐に渡り、熱流体解析は勿論、電磁場や反応を考慮したプロセスシミュレーション等、流体モデルを利用した様々な検討が行われている[1-8]。ドライエッチングと呼ばれる微細加工技術は、基板表面からエッチングされた副生成物がプラズマ中に入り、そのまま戻るものもあれば、反応して別の化学種となって再び基板に付着する化学種もあることから、その気相および表面反応モデルは極めて複雑であり、その構築も容易ではない。エッチングレートは基板に入射するイオンエネルギーや温度に対する依存性を有するが、汎用的な表面反応モデルの構築に必要な実験データは現在もほとんど揃っていない。そのため、プラズマからの入射粒子と基板表面の原子・分子の間で生じる反応を分子動力学 (Molecular Dynamics: MD) を用いて検討する試みも進められている[9]。しかしながら、MDシミュレーションは計算コストが非常に高く、現在も基礎的な研究が進められている段階である。装置シミュレーションに関しては、前章で述べた通り、大きく分けて粒子モデルと流体モデルの2通りがあるが、多くのプ

ATHENASYS Co., Ltd.

ロセスは流体モデルで扱うことが可能であり、計算コストも比較的安価である。また、ハードウェアの性能向上と並列化の利用により、近年は取り扱える化学種や反応式の数も増え、装置開発の指針となり得るレベルになってきた。

本節では、半導体製造装置開発に流体モデルによるプロセスプラズマシミュレーションを利用した Denpoh[4, 8]による2例について主に紹介する。一つはエッチング装置に応用した例[4]で、シャワーヘッドのガス孔近傍に着目し、プラズマがガス孔の出口近傍で局所的に増幅されることを明らかにしている。従来の構造では、シャワーヘッドの孔の出口付近が損傷し、シャワーヘッドの寿命を短くする問題があったが、その原因が解明された。もう一つは、成膜プロセスの一つとして重要なプラズマCVD (Plasma-enhanced Chemical Vapor Deposition) 装置に応用した例[8]で、シミュレーションを活用することにより、Denpohの共著らと共に、ステージに接続されたインピーダンスを調整することによって基板に入射するイオンの密度とエネルギーを制御する方法を確立し、堆積するTiのステップカバレッジと膜の低抵抗化の両方を同時に達成することに成功している。

#### 3.2.2 エッチング装置への応用例

エッチング装置の多くは容量性結合型プラズマ (Capaci-

authors' e-mail: dk@athenasys.co.jp

tively Coupled Plasma; CCP) と誘導性結合プラズマ (Inductivity Coupled Plasma; ICP) に区分される. 一般に ICP は数 Pa 程度の低圧力に用いられることが多い一方で, CCP はおよそ 10~1000 Pa のやや高い圧力で用いられる [10]. プラズマの生成方法が大きく異なり, 特にフラットパネルのような大面積の基板処理には, CCP タイプの装置が多く用いられる. CCP 装置の基本的な構造は平行平板式となっており, 1 つもしくは複数の基板がステージの上に配置され, 上部には基板に対抗するように多数の小さな孔を有するシャワーヘッドが配置される. 導入するプロセスガスはこのシャワーヘッドを介して供給され, 同時にシャワーヘッドが電極の一つを兼ねている. 電圧を印加する従来の方法は, シャワーヘッド側に印加されるアノードカップル型とステージ側に印加されるカソードカップル型の 2 通りであったが, 近年は両電極に印加されるタイプが増えている [6]. シャワーヘッドに 13.56, 27 もしくは 60 MHz といった工業用の高周波 (Radio Frequency: RF) を印加することによりプラズマを生成・維持し, ステージ側には主にイオンエネルギーを制御する目的で, イオンが追従し始める 1 MHz 程度より低い周波数 [11] を印加する 2 周波印加 CCP も検討されている. 片方の電極に異なる周波数を重畳する方式もあり, いずれも入射する荷電粒子のタイミングやそのエネルギー・ラジカルの密度等を制御する方法として用いられている. Denpoh の報告例は, 基板側を接地し, 上部のシャワーヘッドに RF が印加されるアノードカップル型の構造となっている.

計算モデルはシャワーヘッドの孔の一つに着目したもので, 基板とシャワーヘッドの間隔は 35 mm,  $\phi 0.5$  mm の吹き出し孔を中心軸に配置した二次元軸対称モデルである. 以下で説明する計算結果を示した図 1 の片側が計算領域と



図 1 イオン化レート (1/4 周期, ガス流量 0.9 sccm). (Reprinted from "Locally enhanced discharges at gas hole outlets of a showerhead in a plasma etching reactor", K. Denpoh 2009 J. Phys. D: Appl. Phys 42, 032003 (2009), © IOP Publishing. Reproduced with permission. All rights reserved)

なる [4]. 圧力は一般的なプロセスよりも低い 25 mTorr (3.33 Pa), シャワーヘッドに印加される電圧は  $V_{UEL} = V_{rf} \sin(2\pi ft)$  に設定されている. ここで,  $V_{rf} = 150$  V, 周波数  $f$  は 60 MHz である. このとき, Ar ガスが孔の上部から供給され, 中心軸と対向する外側 (電極間) の境界から排気される.

本シミュレーションには有限体積法 (Finite Volume Method; FVM) ベースとするマルチフィジックスソフトウェア CFD-ACE+ [12] が用いられており, 流体モデルをベースとした解析が可能である (新しいバージョンでは, イオンのエネルギーおよび角度分布について, 粒子法を用いてポスト解析する機能も搭載されているが, 本計算が実行された時点ではその機能は搭載されていない). プラズマと中性粒子の流れはカップルされており, 電位の計算にはポアソン方程式を解いて求めている. なお, 電子の輸送係数と反応レートについては SWARM が用いられている [4]. 一般的に, プラズマシミュレーションを報告した例では, ガス密度を一定として計算しているものも少なくないが, 本シミュレーションは計算領域内の圧力や密度の変化が重要であるため, 別途状態方程式を考慮している. なお, CCP タイプの装置では, 一般にプラズマの体積  $V$  とプラズマが接する壁の面積  $S$  の比  $V/S$  が小さく, 壁からの熱のロスが大きいために, ガス温度の上昇は小さいことが期待される. そのため, 本シミュレーションではガス温度一定として計算されている. 以下に Denpoh による文献 [4] で示されている代表的な計算結果を示す.

孔を流れるガス流量 0.9 sccm の条件において, 1/4 周期の位相におけるイオン化レートを図 1 に示す (ガス流量 0 sccm の条件および 0.9 sccm の他の位相における結果は, Denpoh の文献 [4] を参照). 計算モデルは軸対称であるが, 反対側にミラーした結果が示されている. ガス流量 0.9 sccm の時には, 孔の出口で局所的にイオン化レートが大きくなったが, ガスが流れていない条件では, 全ての位相で局所的なイオン化レートの増幅は見られていない.

次に, 中心軸に沿った圧力分布を図 2 に示す. 点線の位

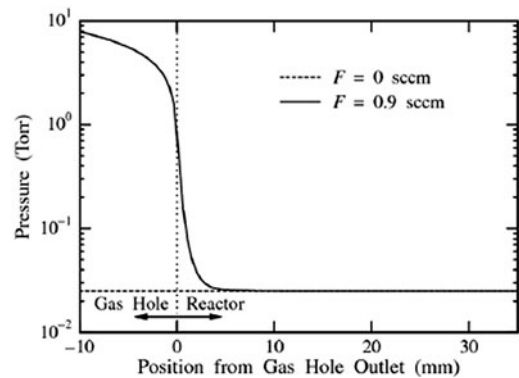


図 2 中心軸上の圧力分布 (孔の出口を横軸 0 として表示). (Reprinted from "Locally enhanced discharges at gas hole outlets of a showerhead in a plasma etching reactor", K. Denpoh 2009 J. Phys. D: Appl. Phys 42, 032003 (2009), © IOP Publishing. Reproduced with permission. All rights reserved)

置よりも左側が孔の内部（上流側）で、点線よりも右側が電極間を示す。孔の内部では、コンダクタンスが非常に小さいために大きな圧力勾配が生じている。本シミュレーションの結果、孔の出口付近においても約 700 mTorr (93.3 Pa) まで圧力が上昇しており、プラズマのバルクの圧力と比較してはるかに高いため、イオン化レートも増幅されて電子密度もその近傍で局所的に高くなっていることが示されている。

中心軸上に沿った電子とイオンの数密度分布を図 3 に示す（横軸は図 2 と同様である）。位相は 1/4 周期の時点であり、実線は電子密度、点線はイオン密度を示す。ガスが導入されている場合、バルクのプラズマ密度も全体的に上昇していることがわかる。これは、位相が進むにつれてシャワーヘッドがアノードからカソードへと相対的に変わる際に、孔の出口近傍で生成した二次電子がバルクに戻り、プラズマ密度の上昇に寄与したことを示唆する。

文献[4]では、実際の装置で実験を行い、孔の断面形状を比較した結果も示されている。ガスを流した条件(a)ではガスを流さない条件(b)と比べ、孔の出口近傍が広がっており、図 3 の結果と対応することが確認されている。この現象は、ステージ側に高周波を印加したカソードカップル型でも確認され、電圧の印加方法には依存しなかったことも報告されている。

以上のように、エッチング装置におけるシャワーヘッドの孔の出口近傍では局所的にプラズマの密度が上昇し、バルクのプラズマ密度の増加にも寄与していることがシミュレーションによって明らかにされた。エッチング装置で利用されるシャワーヘッドを長寿命化するためのヒントが見つかったと同時に、観測や計測が難しい箇所が生じる局所的な現象をシミュレーションによって解明できた意義は非常に大きい。

ちなみに、CCP のようなタイプの装置であってもガス温度の上昇を無視できない場合もある[13]。また、ICP の場合は  $V/S$  比が比較的大きく、一般的にガス温度の上昇を無視できない[3]。その場合、流体モデルの重粒子のエネルギー方程式に、弾性衝突と非弾性衝突によるソース項、お

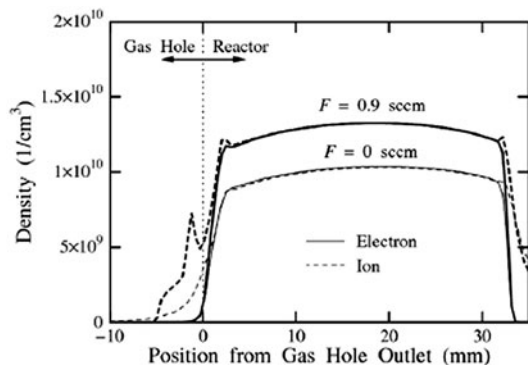


図 3 中心軸上の電子およびイオンの密度分布。(Reprinted from “Locally enhanced discharges at gas hole outlets of a showerhead in a plasma etching reactor”, K. Denpoh 2009 J. Phys. D: Appl. Phys 42, 032003 (2009), © IOP Publishing. Reproduced with permission. All rights reserved)

よびジュール加熱を加えた計算が必要となる。更に、表面反応におけるイオンや活性種のエネルギー損失も考慮することにより、より高精度の解析モデルとすることも可能である。Miyashita ら[7]は、CFD-ACE+を用いて石英製の真空容器を用いた ICP 装置の解析を行い、コイルに掛かる電位の影響を考慮して CCP のタイプと同様にプラズマ電位を求め、シースで加速されるイオンのエネルギー分布・角度分布を利用して石英がスパッタエッチされる分布を計算した。実験結果から得られた石英の損傷の様子（スパッタエッチレートの分布）とシミュレーション結果を比較したところ、その傾向が良く一致し、石英が損傷する分布のメカニズムを明らかにしている。このように、装置の部材が損傷する原因を探り、その対策を検討することは装置設計の上で重要な課題であり、現在のシミュレーションは有用なツールとなっている。

### 3.2.3 プラズマ CVD 装置への応用例

Ti 薄膜はバリア膜やシード層、密着性向上のための接着層等に利用されており、その堆積方法の一つとしてプラズマ CVD が利用されている。熱 CVD を利用した製膜も可能であるが、プラズマを利用することで低温化が可能であることも低温プラズマを利用する利点の一つである[14]。プラズマ CVD による Ti 製膜プロセスは、 $TiCl_4/H_2$  をベースとしたガス系が以前より知られている[8]。これは、気相中で  $H_2$  から解離・生成した H が  $TiCl_4 + H \rightarrow TiCl_3 + HCl$ ,  $TiCl_3 + H \rightarrow TiCl_2 + HCl$  のように反応し、更に  $TiCl_x$  が表面に吸着して  $TiCl_x(s) + H \rightarrow TiCl_{x-1}(s) + HCl(x=1-3)$  のように Cl が表面でも脱離することにより Ti 膜が形成されるプロセスを利用していることによる[8]。

従来のプロセスに Ar を加え、更に Ar 流量が  $H_2$  流量よりも 2 桁ほど多い Ar ベースのプロセスに関する Denpoh らの検討例[8]を以下に紹介する。このプロセスでは、プラズマ中の正イオンは大半を  $Ar^+$  が占めるようになり、基板表面の Cl の脱離に H よりも  $Ar^+$  の寄与が大きくなるような条件が選ばれたとされる。また、基板に堆積する Ti のステップカバレッジの改善をめざし、基板に入射する  $Ar^+$  のフラックスおよびエネルギーを制御する目的で、シミュレーションにも外部回路を考慮している[8]。以下に Denpoh らの文献[8]で示されている代表的な計算結果を示す。

プラズマ CVD 装置の縦断面を図 4 に示す。CCP 装置の一つであるが、上部のシャワーヘッドに印加される周波数は 450 kHz と一般的な装置よりも低い。AlN 製のステージ内には金属のメッシュ電極が埋め込まれており、ステージが下部電極として機能するように設計されている。外部回路はキャパシタとインダクタを基本とし、下部電極に接続されているメッシュ電極のインピーダンスを制御している。

計算結果の一例を図 5 に示す。本シミュレーションにも CFD-ACE+ が用いられており、24 の化学種、86 の気相の反応式、35 の表面反応の式が考慮されている。シミュレーションの結果、電極間の主なプリカーサーと正イオンは  $TiCl_3$  と  $Ar^+$  となっている。付着係数を比較すると  $TiCl_3$

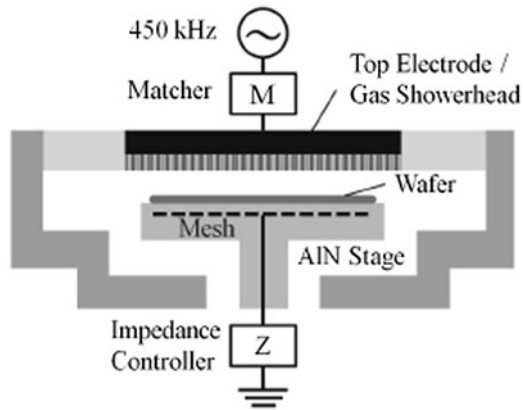


図4 Ti製膜を目的としたプラズマCVD装置. (Copyright 2016 The Japan Society of Applied Physics)

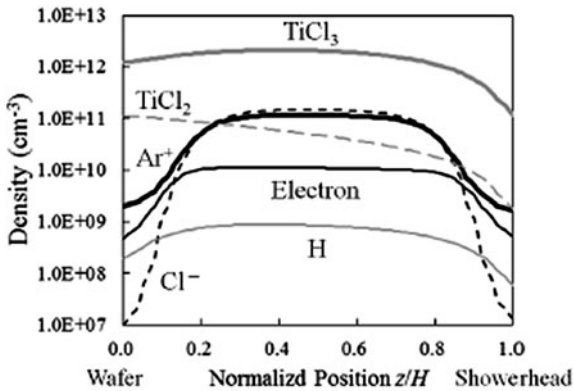


図5 電極間における主な粒子の数密度分布 (太い実線は Ar<sup>+</sup>). (Copyright 2016 The Japan Society of Applied Physics)

の方が TiCl<sub>2</sub> より小さいと考えられることから、ステップカバレッジは大きくなることが期待される [8].

図6に、上部および下部電極で測定された実効的な変位電流 (Max( $I_d$ )/ $\sqrt{2}$ ), 上部電極で測定される電圧の振幅 ( $V_{pp}$ : Peak-to-Peak Voltage), およびインピーダンスを制御する回路のリアクタンス  $X$  に対するステップカバレッジを示す. 変位電流の式  $I_d = \epsilon_0 \partial E_s / \partial t$  と  $V_{pp}$  および  $I_d$  はプラズマ密度  $n_p$  と各電極のシース厚さ  $s$  と関係があり,  $I_d \propto n_p \propto 1/s$  となる [15]. ここで,  $E_s$  はシース内の電界である. したがって, 図6(a)にも示されているように, リアクタンス  $X$  を調整することによりプラズマ密度とシース厚さはある程度制御できることがわかる. 結果として, 図6(b)に示されているように, リアクタンス  $X$  を調整することにより, ステップカバレッジを制御できることが示された. 文献[8]では, 本シミュレーションとは別のモンテカルロ法を用いたシース内の Ar<sup>+</sup> の軌跡の解析も行い,  $n_p$  の増加に伴いシース厚さが減り, イオンと中性粒子との衝突が減ることから高エネルギーの Ar<sup>+</sup> のフラックスが増加することも述べられている (CFD-ACE+ の新しいバージョンでは, 壁に入射するイオンのエネルギーおよび角度分布について, 粒子法によるポスト解析を行う機能が搭載されているが, 文献[8]で述べられているシース内の解析は, これとは別である). 図6(b)に示されている Bottom Side のステップカバレッジは急峻なピークを持って変化している

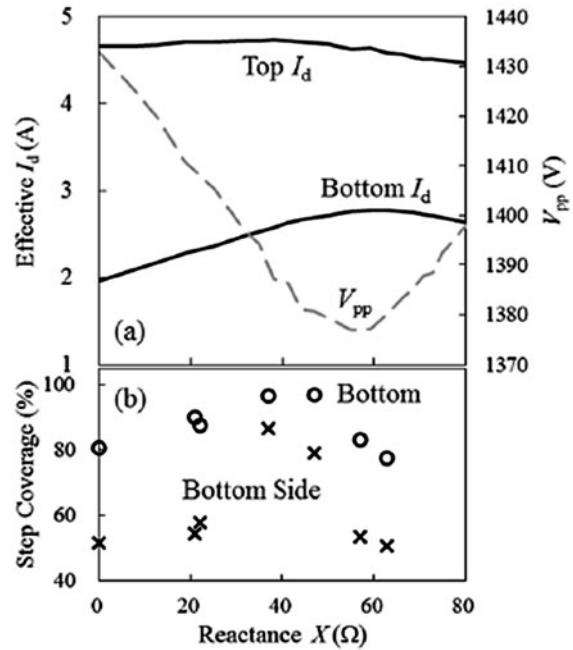


図6 リアクタンスに対する効果 ((a) 上部および下部電極に流れる変位電流  $I_d$  と電圧の振幅  $V_{pp}$  のリアクタンス依存性, (b) トレンチの底および側壁のステップカバレッジに対するリアクタンス依存性). (Copyright 2016 The Japan Society of Applied Physics)

が, Ar<sup>+</sup> の入射角度に対して強い依存性を持つことに起因している [8].

異なる電力 (RF 電源の設定値) において, リアクタンス  $X$  に対する Ti 膜のシート抵抗値についても検討されており, 投入電力が大きいほどシート抵抗値が下がる傾向が示されている. ボーム速度を  $U_B$  とすると, 基板に入射する Ar<sup>+</sup> のフラックスは  $e^{0.5} n_p U_B$  で表される [16] ことから, 電力の増加に伴い Ar<sup>+</sup> のフラックスも増加する. また, 一般に  $V_{pp}$  も電力に比例するため, 電力の増加に伴いイオンエネルギーも増加する. いずれも Ar<sup>+</sup> が基板表面に吸着した Cl の脱離を促進していることを示唆している.

以上のように, Ar ベースのプロセスにしてステージに接続されたインピーダンスを制御した結果, Ar<sup>+</sup> のフラックスが増加して表面の Cl 脱離を促進し, ステップカバレッジを向上させると同時に, シート抵抗値を低減させて膜質の向上にも成功していることが示された.

FVM を用いた流体モデルでは, 化学種や反応式が増えなくても必要となる物理メモリは一般的なワークステーション (workstation; WS) に搭載できるサイズで十分であり, また, 計算速度も急激には低下しない. そのため, 数多くの化学種と素反応を考慮した計算を安定に解けるのもメリットの一つである. なお, 同じ流体モデルでも有限要素法 (Finite Element Method; FEM) を用いる場合, 解が得られる場合は計算時間を短縮できる傾向がある一方で, 問題によっては収束しないこともある. また, FEM は一般に膨大な物理メモリを必要とするため, どちらを選択するかは, 解析対象やハードウェアのリソースなども考慮すると良いであろう.

### 3.2.4 まとめと今後の課題

流体モデルを利用したプラズマシミュレーションとして、Denpoh[4,8]による半導体製造装置のプロセスプラズマシミュレーションを2例紹介した。エッチング装置への応用例では、シャワーヘッドの孔の出口近傍で局所的なプラズマ密度の増加が生じることが解明され、シャワーヘッドの損傷の原因を明らかにされた。また、プラズマCVD装置への応用例では、導入ガスにArを加え、またその流量を過剰にすることにより、プラズマ中の主たる正イオンが $Ar^+$ となるようにプロセスを変更したことに加え、ステージに接続されたインピーダンスを制御して基板に入射する $Ar^+$ のフラックスを制御することにより、ステップカバレッジと膜質の向上が同時に達成された。どちらもプラズマシミュレーションが有効に活用されており、実験のみに頼った従来の方法だけでは成しえなかった例と言える。

FVMを用いた流体モデルによるプロセスシミュレーションでは、考慮した化学種や反応式の数が多い場合でも安定して計算を進められる利点がある。また、総セル数が数万程度で収まる二次元の計算モデルであれば、マルチコアと16GB程度の物理メモリを有する近年のWSでも十分解析可能である。しかしながら課題もあり、WSとソフトウェアがあれば誰でも簡単にプロセスシミュレーションを行えるかという点、答えはNoである。その一番の理由は、シミュレーションで必要とするデータベースの不足が挙げられる。気相の反応、特に複数のガスが混合するプロセスでは、プラズマ中に存在し得る化学種のデータが十分揃っているわけではなく、その素反応についても電子衝突断面積・反応レート等のデータが全て揃っているわけではな

い。また、表面反応については、ごく限られた条件しかわかっていないのが実情であり、モデルを構築することができた場合でも、モデルで必要となる反応速度定数が装置やその使用環境に依存するため、汎用的なデータベースはないに等しい。この点は流体モデルに限った話ではないが、より広範囲で良質なデータベースを準備する必要があり、今後の大きな課題である。

### 参考文献

- [1] K. Ono, J. Plasma Fusion Res. **80**, 909 (2004).
- [2] S.T. Sao *et al.*, *Proc. ICCAS 2005*, 519 (2005).
- [3] K. Ikeda *et al.*, J. Vac. Soc. Jpn. **50**, 423 (2007).
- [4] K. Denpoh, J. Phys. D: Appl Phys. **42**, 032003 (2009).
- [5] A. Bhoj *et al.*, ECS Transactions, **25**, (8) 719 (2009).
- [6] H. Daoxin *et al.*, J. Semicond. **33**, 104004 (2012).
- [7] M. Miyashita *et al.*, Gaseous Electric Conference KW 3.00005 (2015).
- [8] K. Denpoh *et al.*, *Proc. Symposium on Dry Process*, 183 (2016).
- [9] S. Hamaguchi, J. Plasma Fusion Res. **85**, 177 (2009).
- [10] 菅井秀郎：プラズマエレクトロニクス（オーム社，2000）p.106.
- [11] 菅井秀郎：プラズマエレクトロニクス（オーム社，2000）p.48.
- [12] <https://en.wikipedia.org/wiki/CFD-ACE+>
- [13] A. Greig *et al.*, *Front. Phys.*, **2**, (80) doi: 10.3389/fphy.2014.00080.
- [14] O. Takai, J. Plasma Fusion Res. **76**, 759 (2000).
- [15] M.A. Lieberman：プラズマ／プロセスの原理第2版（丸善，2010）p.312.
- [16] 菅井秀郎：プラズマエレクトロニクス（オーム社，2000），p.57.



いけだ けい  
池田 圭

1989年東京理科大学卒業，同年日電アネルパ(株)（現，キヤノンアネルパ(株)）入社。2001年ウェブフロント入社。2008年10月(株)アテナシス設立。化学反応を含んだマルチフィジックス解析に従事。今回，小田先生より貴重な機会をいただき，また，弊社でサポートしているマルチフィジックスソフトウェアを応用した代表例として，伝宝様の論文を紹介させていただきました。実用的な応用例として少しでも参考になれば幸いです。