

氏名	佐藤 玄太
授与学位	博士(工学)
学位授与年月日	平成17年3月25日
学位授与の根拠法規	学位規則第4条第1項
研究科、専攻の名称	東北大学大学院工学研究科(博士課程)電子工学専攻
学位論文題目	弱磁化ヘリコン波プラズマの特性と新規応用
指導教員	東北大学教授 畠山 力三
論文審査委員	主査 東北大学教授 犬竹 正明 東北大学教授 澤谷 邦男 東北大学助教授 飯塚 哲 東北大学助教授 金子 俊郎

論文内容要旨

第1章 序論

ヘリコン波放電は、 10^{13} cm^{-3} もの高密度プラズマを 1 kW 以下の低い電力で生成することができるという特徴があり、制御熱核融合や材料・デバイスプロセス、宇宙推進技術など多くの研究分野で重要な研究対象となっている。

これまで、高周波周波数 ω と電子サイクロトロン周波数 ω_{ce} の比が $\omega/\omega_{ce} \ll 1$ となる数十 mT 付近でのヘリコン波プラズマ生成物理機構の解明のため多くの基礎物理研究が行われており、プラズマ中を伝搬する速波から減衰の大きな遅波へのモード変換による高効率波動吸収機構が支持を得ている。ヘリコン波放電を用いることで分子性ガスを効率的に解離し高密度プラズマが得られることから、シリコン高速選択エッチングを始め材料プロセスなどへの応用が研究されている。ヘリコン波放電に必要な外部磁場は電磁石コイルにより発生することが多く、応用上運転コストを低くするため、10 mT 程度の比較的低い磁場を用いることが多い。しかし、商用周波数 13.56 MHz を用いた誘導結合型放電では、この $\omega/\omega_{ce} \geq 0.05$ 程度の弱磁場領域において誘導結合型放電からヘリコン波放電への移行状態にあり、その閾値など未だ明確ではない。また、稀に $0.1 < \omega/\omega_{ce} < 1$ 近傍の弱磁場中でプラズマ密度が極大となる現象も観測され、この現象を明らかにしプラズマ源へと応用することは極めて有用である。

本論文では、 $\omega/\omega_{ce} \geq 0.05$ の弱磁場領域においてヘリコン波放電を行い、磁場強度や高周波電力など外部パラメータを変化させ、プラズマ密度とプラズマ中ヘリコン波との関連性について実験を行っている。実験結果を基にプラズマ密の極大現象の物理機構を始めとする弱磁化ヘリコン波プラズマの特性を体系的に明らかにし、さらに弱磁化ヘリコン波プラズマの新規応用領域を開拓することが本論文の目的である。

第2章 弱磁場中ヘリコン波理論

ヘリコン波による高密度プラズマ生成が見出されて以来、理論研究は強磁場条件の下に行われていた。本章では弱磁場に焦点を絞り強磁場とは異なるヘリコン波の挙動に関して理論的観点から述べている。

有限磁化プラズマ中電磁波は磁力線に対して角度を持って伝搬するため、波数 k は磁力線に平行成分 k_z と垂直成分 k_{\perp} に分解できる。これらの関係を周波数 $\omega/2\pi = 13.56 \text{ MHz}$, 密度 $n_e = 10^{11} \text{ cm}^{-3}$ の条件で求めた結果が図1である。太破線で示される $k = k_z$ 直線よりも下の領域が伝搬領域を示し、一つの k_z に対して二つの k_{\perp} 、すなわち遅波(実線)と速波(点線)がプラズマ中に存在する。磁場が強い場合、速波・遅波共に存在するが、磁場が弱くなるに従い速波伝搬領域が狭まり、1 mTにおいては遅波のみが存在する。一般に $\omega/\omega_{ce} \ll 1$ となる強磁場中では速波がプラズマ中を伝搬するが、 $\omega/\omega_{ce} \lesssim 1$ 近傍の弱磁場においては遅波が支配的であることがわかる。そのため強磁場ヘリコン波放電とは区別して議論をする必要がある。

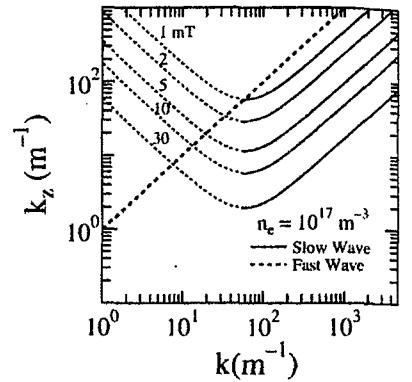


図1:弱磁場中ヘリコン波理論分散関係。

第3章 実験装置

本章では、本研究で用いた実験装置及び計測法について説明している。

実験は同軸上に接合されたガラス製円筒真空容器(内径 9 cm, 全長 38 cm)とステンレス製円筒真空容器(内径 263 cm, 全長 80 cm)から構成された東北大学 M_T-machine を用いて行った。真空容器外部には電磁石コイル群が設置され、最大 $B_0 = 11 \text{ mT}$ の一様磁場を軸方向に定常に印加することができる。ガラス真空容器外部には位相差制御型ヘリカルアンテナ(全長 20 cm)が取り付けられており、ガラス容器内部にモード $|m|=1$ (m : 方位角方向波数) の円偏光高周波電磁場(13.56 MHz, 2 kW)を発生させ、アルゴンガスを用いてプラズマ生成及びヘリコン波励起を行う。プラズマパラメータは軸方向及び径方向から挿入した静電(ラングミュア)プローブを用い、またプラズマ中電磁波は磁気プローブを用いて、外部パラメータに対する変化を計測している。また、ヘリコン波の新規応用として炭素ナノ物質の形成を行う。メタンガスや水素ガスを用いてヘリコン波プラズマを生成し、ニッケルなどの基板上に成膜を行い電子顕微鏡により評価を行う。

第4章 弱磁場中での $|m|=1$ ヘリコン波によるプラズマ生成

本章では弱磁場下において $|m|=1$ 高周波電磁場によりプラズマ生成を行い、外部パラメータに対する

プラズマ密度の変化とヘリコン波の関連性に関する詳細な実験結果をまとめ、実験結果を基に弱磁場でのヘリコン波放電の特性について体系的に述べている。

$|m|=1$ 電磁場励起アンテナを用い、外部印加磁場の強度と印加方向を変化させてプラズマ生成を行うと、 $B_0 = 2 \sim 5$ mT 程度の磁場を電磁場が $m=+1$ となる向きに印加することで一桁以上の密度上昇が生じる(図 2)。強磁場中ヘリコン波放電と同様、 $m=-1$ 電磁場を励起した場合に比べて $m=+1$ 電磁場を励起した場合の方がより大きな密度上昇を得ることができる。密度上昇に伴って $|m|=1$ ヘリコン波がプラズマ中を伝搬しており、理論分散関係との比較からヘリコン波の中でも k_\perp の大きな遅波として伝搬していることがわかった(図 3)。密度上昇のない場合にはプラズマ密度はアンテナ近傍で最大となるのに対して、密度上昇の生じる場合にはアンテナから離れた位置において密度が最大となることから、このヘリコン波遅波によりプラズマ生成が生じていると考えている。位相制御型ヘリカルアンテナに加えて二種類の $|m|=1$ ヘリコン波放電アンテナを用いてプラズマ生成を行ったところ、すべてのアンテナで弱磁場密度上昇が生じる。ヘリコン波遅波の理論分散関係を用いて、電子密度磁場依存性から電子密度とプラズマ中ヘリコン波波長

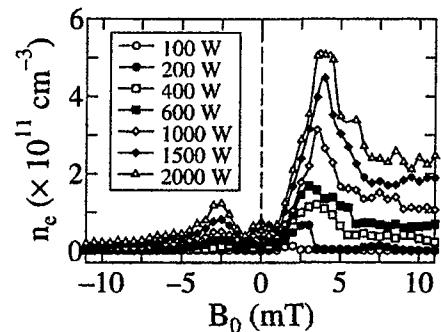


図 2：電子密度外部磁場依存性。

の相関関係を導き出したところ、弱磁場での密度上昇はアンテナ近傍の拡散プラズマ中ヘリコン波波長(λ_z)がアンテナにより励起される電磁場一波長と一致することでヘリコン波が効率よく拡散プラズマ中へ放射され生じていることが明らかになった(図 4)。この弱磁場領域で観測されるヘリコン波は励起された段階で遅波に相当する。そのため、強磁場中のヘリコン波吸収機構として考えられている減衰の小さな速波から大きな遅波への変換を介した吸収機構が適応できない。ヘリコン波の位相速度を測定したところ、密度上昇の見られる弱磁場領域において、電子熱速度に極めて近い速度になる。ランダウ減衰衝突周波数と電子—イオン間、電子—中性粒子間の衝突周波数を比較したところ、ランダウ減衰の効果が最も大きく、弱磁場中ヘリコン波遅波によるプラズマ生成においてはこのランダウ減衰によるヘリコン波から電子へのエネルギー授受が支配的と考えている。

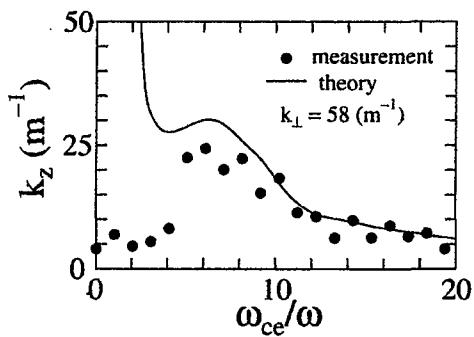


図 3：プラズマ中電磁波と理論分散関係の比較。

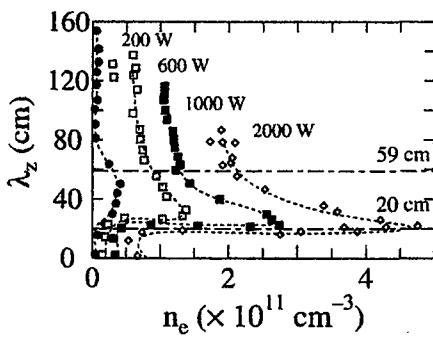


図 4：電子密度ヘリコン波波長相関関係。

第5章 弱磁化ヘリコン波プラズマによる炭素ナノ物質創製

近年の半導体デバイスの超微細化に伴って、プラズマ源には低電子温度や密度の均一性などプラズマパラメータのより精密な制御が求められてきた。そのため、ヘリコン波の超高密度プラズマや原料ガスの過剰解離などが半導体プロセスへの応用上問題となっている。そこでヘリコン波プラズマの新たな応用として、本章ではナノスケール電子素子として応用が期待されるカーボンナノチューブなどの炭素ナノ物質の合成について述べている。

メタンガスや水素ガスを用いて実験を行ったところ、アルゴンガスの場合と同様に弱磁場中でヘリコン波による密度上昇が生じる。最適ガス圧力としては、電子・中性粒子間衝突周波数が高周波周波数と同程度の 1 Pa 近傍である。ヘリコン波放電により分子から原子やラジカル、原子状イオンを生成することが可能である。水素とメタンの混合ガスによりヘリコン波プラズマを生成したところ、電子密度などプラズマパラメータは混合ガス中のメタン濃度に依存せず、プラズマ中ラジカル濃度のみが大きく変化する(図 5)。これは到達電子密度が外部磁場強度と分散関係により制限を受けているためと考えている。弱磁場中ヘリコン波水素メタン混合プラズマを用いることで、 0.7 Pa という従来プラズマ化学気相成長法で用いられるよりも二桁近く低いガス圧力下において多層カーボンナノチューブを形成できることが明らかになった(図 6)。また、カーボンナノチューブ以外にもカーボンナノウォールも形成が可能である。

第6章 結論

本章では、本研究で得られた成果を要約し、結論としている。本研究成果を総括すると、誘導結合型放電プラズマに外部磁場を印加することで発生するプラズマ密度極大現象は、弱磁場の狭い範囲においてアンテナ直下電磁場と拡散プラズマ中電磁波波長が一致することで励起されたヘリコン波遅波によるランダウ減衰を介して引き起こされることを明らかにした。さらに、メタン・水素ガスを用いて弱磁場ヘリコン波放電により高密度反応性プラズマを生成し、化学気相成長法により、従来よりも二桁近く低圧力下においてカーボンナノチューブを始めとする炭素ナノ物質の合成が可能であることを見出した。

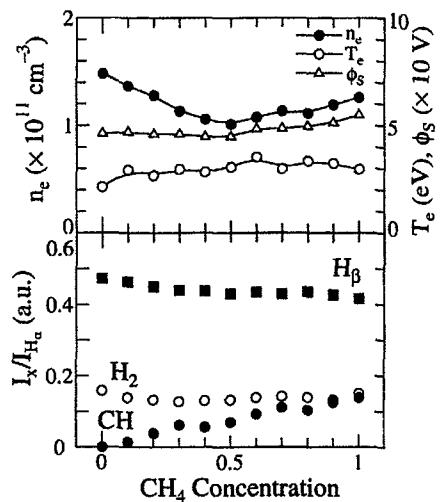


図 5：プラズマパラメータ及びラジカル濃度の CH_4/H_2 混合比依存性。



図 6：カーボンナノチューブ SEM 像。

論文審査結果の要旨

多種多様なプラズマ生成法の中で他に例を見ない定常的な高密度プラズマを発生することができるヘリコン波放電の研究は、制御熱核融合や材料・デバイスプロセス、宇宙推進技術など多くの研究分野において重要な研究課題となっている。本論文は、ヘリコン波プラズマ源において生じる極めて低い磁場強度でのプラズマ密度が極大となる現象を始め、応用上重要な弱磁場中でのヘリコン波放電プラズマの特性を明らかにすると共に、炭素ナノ物質創製法にヘリコン波プラズマを初めて応用した研究結果をまとめたもので、全編6章から成る。

第1章は序論であり、本研究の目的と意義を明らかにしている。

第2章では、数mTの弱磁場中ヘリコン波における理論的な特徴を述べている。通常用いられている数十mT以上の強磁場中ヘリコン波とは異なり、弱磁場においてはヘリコン波の中で速波ではなく遅波が支配的であり、強磁場ヘリコン波放電とは区別した研究の必要性を述べている。

第3章では、実験装置および方法について述べている。従来の研究で用いられていた $|m|=1$ アンテナ(m : 方位角方向波数)は真空中では直線偏光電磁場を励起し、プラズマの条件によっては円偏光電磁波であるヘリコン波の励起が生じないため、励起と伝搬の物理特性を分離した実験が困難であった。本論文においては、複数のアンテナを組み合わせそれらに供給する高周波電力の位相差を制御することでアンテナ直下に $|m|=1$ 円偏光電磁場を安定に励起することに成功し、励起と伝搬を分離した実験結果を示している。これは注目に値する。

第4章では、弱磁場中ヘリコン波放電プラズマ特性の詳細な実験結果をまとめている。アンテナ励起電磁場波長と近傍プラズマ中の電磁波の波長が一致する磁場強度において、ヘリコン波遅波が伝搬して密度上昇を引き起こすことを初めて明らかにしており、これはヘリコン波プラズマ源の装置設計指針を与える極めて重要な成果といえる。また、弱磁場中ではランダウ減衰による波動吸収が支配的であることや、 $m=-1$ ヘリコン波にカットオフが存在することなど新たな実験事実を見出しており、高く評価できる。

第5章では、メタンや水素を用いて生成した弱磁化反応性ヘリコン波プラズマによる炭素ナノ物質創製の結果について述べている。弱磁化ヘリコン波プラズマは波長の一致条件で磁場と密度が決定されるため、原料ガスの混合比を変えた場合、ラジカル濃度が変化してもプラズマパラメータが一定なプラズマ源となることを明らかにしている。さらに、反応性弱磁化ヘリコン波プラズマを用いることで、従来よりも二桁以上低ガス圧力において多層カーボンナノチューブを形成できることを明らかにし、この成果はヘリコン波プラズマの応用の可能性を広げると共に、カーボンナノチューブ形成機構解明に新たな知見を与えており、高く評価できる。

第6章は結論である。

以上要するに本論文は、弱磁場中ヘリコン波放電に関する詳細な実験を行い、プラズマ密度が極大となる現象を始めとする弱磁化ヘリコン波プラズマの特性と物理機構を論じると共に、ヘリコン波プラズマを用いる極低圧力下でのカーボンナノチューブ創製という新たな応用の可能性を示し、電子工学およびプラズマ理工学の発展に寄与するところが少なくない。

よって、本論文は博士(工学)の学位論文として合格と認める。