



Title	レーザーアブレーションプラズマ中の電子の挙動に関する研究
Author(s)	伊達, 広行; 鈴木, 元幸; Ventzek, Peter L. G.; 下妻, 光夫; 酒井, 洋輔; 田頭, 博昭
Citation	北海道大学医療技術短期大学部紀要, 8, 183-189
Issue Date	1995-12
Doc URL	<a href="http://hdl.handle.net/2115/37597">http://hdl.handle.net/2115/37597</a>
Type	bulletin (article)
Note	短報
File Information	8_183-190.pdf



[Instructions for use](#)

## レーザーアブレーションプラズマ中の電子の挙動に関する研究

伊達 広行・鈴木 元幸\*・Peter L. G. Ventzek\*・下妻 光夫  
酒井 洋輔\*・田頭 博昭\*

### Electron Dynamics in Laser Ablation Plasmas

Hiroyuki Date, Motoyuki Suzuki\*, Peter L. G. Ventzek\*, Mitsuo Shimosuma,  
Yousuke Sakai\* and Hiroaki Tagashira\*

#### Abstract

The behavior of electrons in a laser ablation plasmas is investigated using a Monte Carlo simulation. Laser ablation plasmas have applications ranging from microelectronics manufacturing (via etching and thin film deposition) to medical technology (lithotripsy and dental surgery). The control of the electron dynamics is crucial when the ablation plume (removal material) chemistry is important and should be controlled. In this study, the electron swarm behavior in  $\text{Cl}_2$  gas is examined, considering the self and applied electric fields and neutral gas background densities that vary as functions of time and space. The initial rapid expansion of the electrons induces large self-fields which tend to confine the electrons in the plume bulk. However, they are rapidly lost by dissociative attachment. These results indicate that an externally applied electric field is necessary to achieve more fully dissociated plumes which may be more useful for etching applications.

#### 要 旨

レーザーアブレーションプラズマ中の電子の振る舞いを、モンテカルロ法により解析した。ここでは特に、固体  $\text{Cl}_2$  から生成されるプラズマ中の電子スウォームについて、時間と空間的位置に依存する電界ならびに中性粒子密度の条件下でシミュレーションを行った。この結果、電子が空間電荷による電位ポテンシャルの谷に局在して分布するとともに、電子付着衝突過程がその谷において非常に頻繁に起こることが明らかとなった。また、エッチング等の応用に有効な条件を達成するには、外部電界

---

北海道大学医療技術短期大学部診療放射線技術学科

\*北海道大学工学部電気工学科

Department of Radiological Technology, College of Medical Technology, Hokkaido University

\*Department of Electrical Engineering, Hokkaido University

等が必要であることが示唆された。

## 1. はじめに

最近、イオンや中性粒子のビーム源とすることを目的とした、金属等の固体表面に強力な紫外線レーザーを照射して得られるプラズマ（レーザーアブレーションプラズマ）の研究がさかんに行われている。レーザーアブレーションは、それ自体、眼科・外科学的手術および半導体製造プロセス等において、物質表面のエッチングやカッティングに用いられつつある技術であるが、同時に、それによって生み出されたプラズマを源として、イオン、中性粒子、電子さらに X 線を効率良く取り出し、物質表面の膜堆積や新素材の創製、リソグラフィ等に応用することが画策されている。しかしながら、短時間にレーザーパルス照射して生成されるプラズマの動的過程は一般に複雑で、明らかにされていない点が多い。

本研究は、レーザー照射の対象となるターゲットとして氷結  $\text{Cl}_2$  ペレットを用いたレーザーアブレーションプラズマのモデリングを行い、プラズマの生成発展過程に主導的な役割を果たす電子の振る舞いのモンテカルロシミュレーションを行うものである。 $\text{Cl}_2$  のレーザーアブレーションプラズマは最近半導体のエッチング等に有効であることが報告されており<sup>(1)(2)</sup>、中性粒子やイオンビーム源としての最適化が望まれている。電子はレーザー光やプラズマ内の電界で短時間に容易に加速、高温化されるので、イオンや励起原子、ラジカルなどの粒子は、こうした電子と基底状態の粒子との衝突により主として生成されると考えられる。また、プラズマ内で強力な紫外線レーザー光エネルギーを吸収した電子は種々の相互作用により X 線の発生を引き起こすことが知られている<sup>(3)</sup>。よって、電子のエネルギー分布や空間分布を調べることは、プラズマの特性を知り有益な応用技術を開発する上で必要不可欠であると考えられる。

レーザーアブレーションプラズマの解析においては、しかしながら、電子のみを独立な条件下でシミュレーションすることは不可能であり、他の粒子との相互作用を時間的・空間的な関数として組み入れなければならない。本解析では、電子のモンテカルロシミュレーションに必要な電界強度とガス粒子密度を、あらかじめ流体方程式解析により求めておき、それら条件下でシミュレーションを行い、その結果を流体方程式の解析にフィードバックさせるという手順を用いることにした。これら一連の操作を繰り返すことにより、自己矛盾のない、より現実的な解を得ることが可能であると考えたためである。現時点では、流体方程式へのフィードバック解析にはまだ至っていないが、動的な電界、ガス密度条件下での電子群のシミュレーションにより、ドリフトと拡散、電離や電子付着を経て電子が時々刻々と空間的な分布を変える様子を明らかにし、空間電荷で生ずる電位ポテンシャルの谷において、電子が解離付着衝突過程により非常に短時間に減少すること等を確認した。

## 2. 解析モデルと計算方法

電子のモンテカルロシミュレーションに先立つ流体方程式の解析は、アブレーションプラズマ内の中性粒子については拡散方程式を、荷電粒子については文献(4)と同様なドリフト・拡散モデルを用いて行われた。このとき、各粒子が固体表面から飛び散る際の初期速度は  $1 \text{ cm}/\mu\text{s}$ 、レーザー照射のスポットサイズは半径  $3 \text{ mm}$ 、照射直後の各粒子の広がり分布は、固体表面から最大  $2 \text{ mm}$  の位置までと仮定している。ここでは、電子温度の時間空間的発展過程は次のエネルギー方程式で決定されている。

$$\Delta T_{e,i} = - \left( \sum_{l=1}^{reactions} k_l \Delta H_l \prod n_{\neq electron} \right)_i + \left( \Delta \cdot \left( T_e \frac{\Gamma_e}{n_e} \Delta t \right)_i + \int_{xi}^{xi+dx} E_i \cdot \langle v \rangle_i \Delta t \right)$$

上式の右辺第1項目は、非弾性衝突によるエネルギー損失、第2、3項は電子の熱対流移行を表わしている。なお、電子付着衝突過程1回でのエネルギー損失は付着する電子のエネルギーの平均値とし、また運動量移行衝突過程でのエネルギー移行、超弾性衝突過程は考慮していない。この流体方程式による解析で考慮した反応過程は： $Cl_2 + e \rightarrow Cl_2^+ + 2e$ ,  $Cl + e \rightarrow Cl^* + e$ ,  $Cl + e \rightarrow Cl^+ + 2e$ ,  $Cl_2 + e \rightarrow Cl_2^* + e$ ,  $Cl_2 + e \rightarrow Cl + Cl + e$ ,  $Cl_2 + e \rightarrow Cl^{*+} + e$ ,  $Cl_2 + e \rightarrow Cl^- + Cl$ ,  $Cl_2 + e \rightarrow Cl_{2v} + e$ ,  $Cl^+ + Cl_2 \rightarrow Cl_2^+ + Cl$ ,  $Cl + Cl + Cl_2 \rightarrow Cl_2 + Cl_2$ ,  $Cl_2^+ + e + M \rightarrow Cl_2 + M$  であり、Rogoff et al.<sup>(6)</sup>と Bassett & Economou<sup>(6)</sup>のものを基礎としている。

図1に、本解析に対する構成モデルを示す。

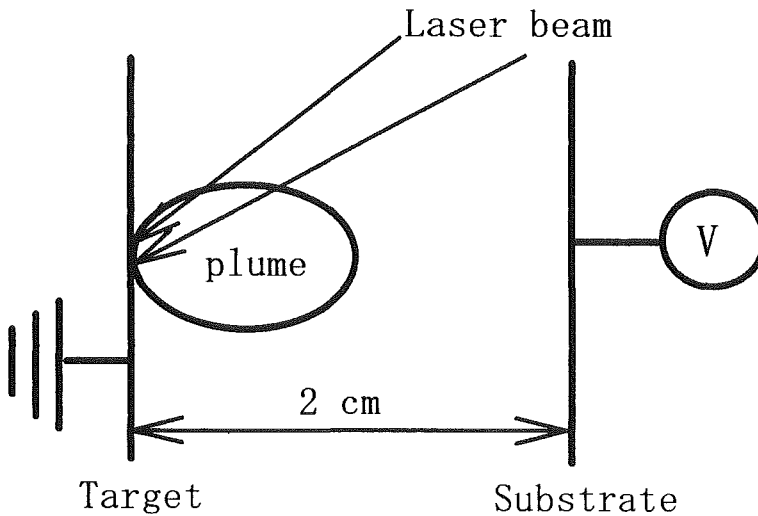


図1 構成モデル

上記の流体方程式解析より導出された電位分布から求まる固体表面と垂直方向（x軸方向）の電界分布と $Cl_2$ 粒子密度は、図2にあるような形状をしており、レーザー照射直後、真空バックグラウンドにおいて固体表面近傍に粒子が局在していることを示している。

電子のモンテカルロシミュレーションでは、電子の衝突相手として $Cl_2$ 以外の粒子は十分少ないという仮定を用いた。また、 $Cl_2$ の電子衝突断面積は、Rogoff et al.<sup>(6)</sup>と同様である。流体方程式解析で得られた電界と $Cl_2$ 粒子密度の各位置と時間に関する離散データ間の値は線形補間された。電子の軌道の追跡は、FFT法<sup>(7)</sup>によって行い、微小時間ステップ毎にその位置での電界と衝突粒子密度を考慮した。

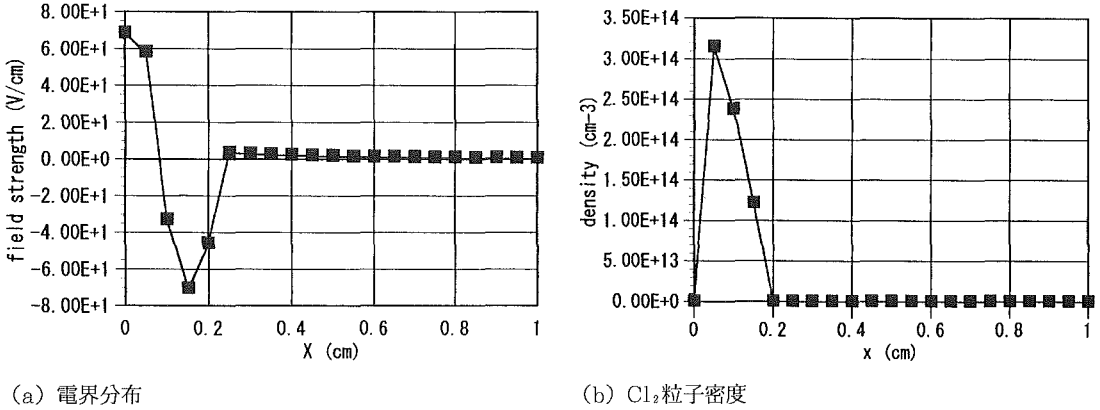


図2 固体表面と垂直方向の (a) 電界分布と (b) Cl<sub>2</sub>粒子密度 (t=20nsec)

### 3. 結果と考察

図3に、電子の空間分布を示す。ここでの電子数は、レーザー照射するスポットを基点とする固体表面と垂直なx軸に関しての回転軸対称性を仮定し、xと、x軸からの距離rの2次元円柱座標においてサンプルされた。xとrのサンプリングメッシュサイズは、それぞれ、0.01cmと0.05cmである。Cl<sub>2</sub>粒子分布の初期条件(t=0)は、図2のt=20ns後のデータをもとに、形状をそのままに、密度はその1000倍を仮定している。また、初期電子はx軸上(r=0)にCl<sub>2</sub>粒子密度と同じ形状で分布し、初期エネルギーは平均10eVのマクスウエル分布と仮定した。なお図3では、r軸方向の分布を鏡対称に折り返して表示している。

図3の結果より、電界強度がピークとなるx=0.15cm(図2参照)付近で電子の拡散、電離が活発に起こっていることがわかる。またこれら電子は、初期分布のピーク的位置をx軸の正方向へ極わずかな時間に(0.5~1ns)シフトさせるが、強い空間電荷電界によって引き戻され、固体表面から0.2cmより先へはほとんど到達しないうちに電子付着によって消滅していくことが認められる。このようにごく短時間に電子が消滅してしまう現象が、実際のアブレーションプラズマを忠実に反映したものであるかどうかは、この解析のみからは判断できないが、電子の初期エネルギーの平均値を10から1eVの間で変化させても、電子が消滅する時間スケールにほとんど差異がみられないことから、Cl<sub>2</sub>ガスプラズマ中で空間電荷による電位ポテンシャルの谷に閉じこめられた電子は、谷の中を往復しながら次第にエネルギーを失い、非常に高い頻度で解離付着衝突反応(Cl<sub>2</sub>+e→Cl<sup>-</sup>+Cl)を起こすようになると思われる。この結果は一方で、エッチング等に必要イオンや他の励起種を電子衝突を通して十分に生成することができなくなることを意味しており、プラズマ内でより多くの解離種を生み出すためには、外部からの電界もしくは別のレーザー光によるアシストが必要となることを暗示している。本解析のモデルでは、各反応過程の初期条件や固体表面の境界条件に種々の仮定を用いているが、実験上のプラズマ診断においても現時点で不明な点が多く、シミュレーション条件を様々に変化させる等の試行錯誤を通して、実験との整合性を高めつつ上記応用に向けた最適条件を見出していく必要があると思われる。

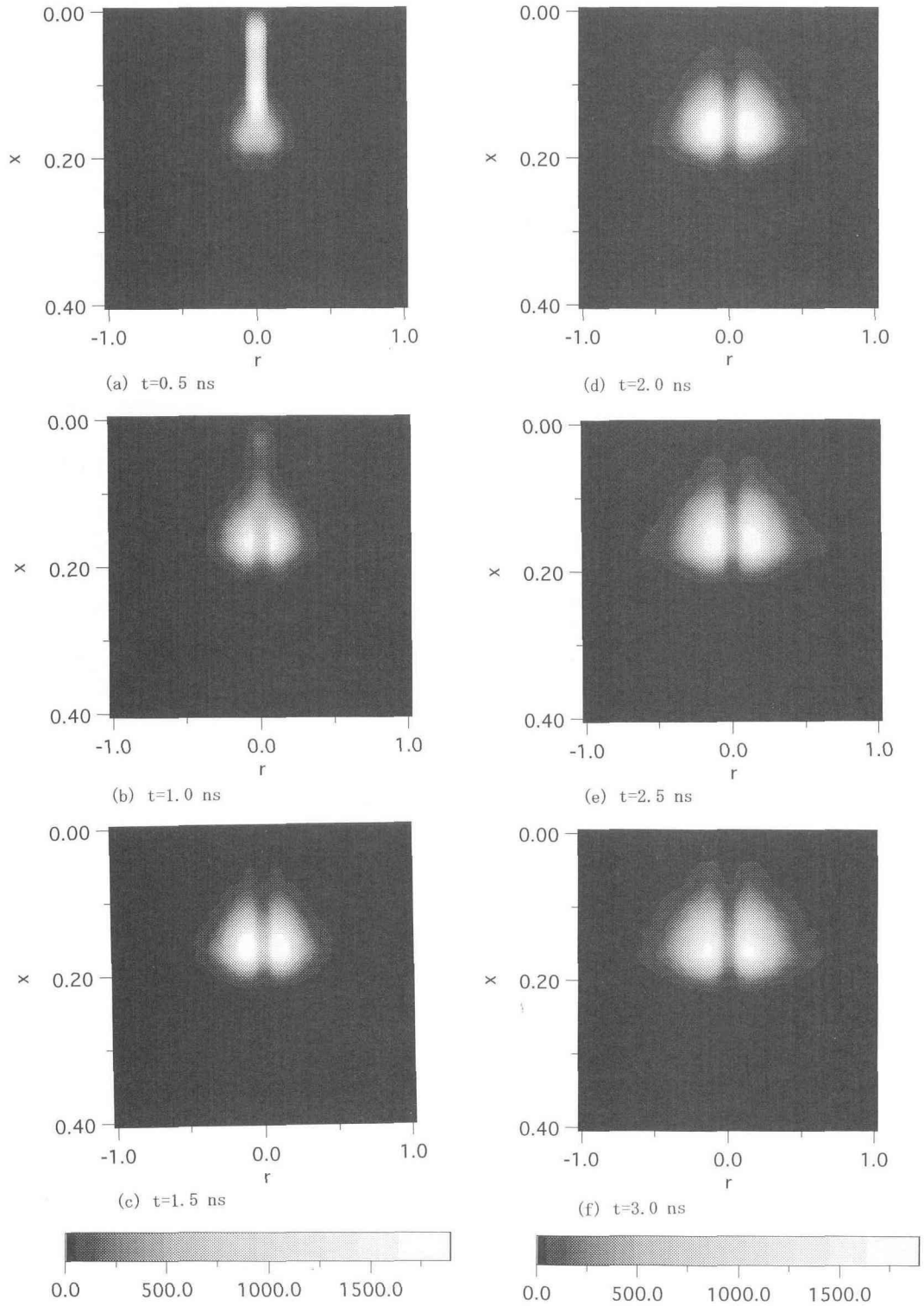


図3. (a)~(f)  $(x, r)$  座標における電子数分布(濃淡の度合は任意目盛り)

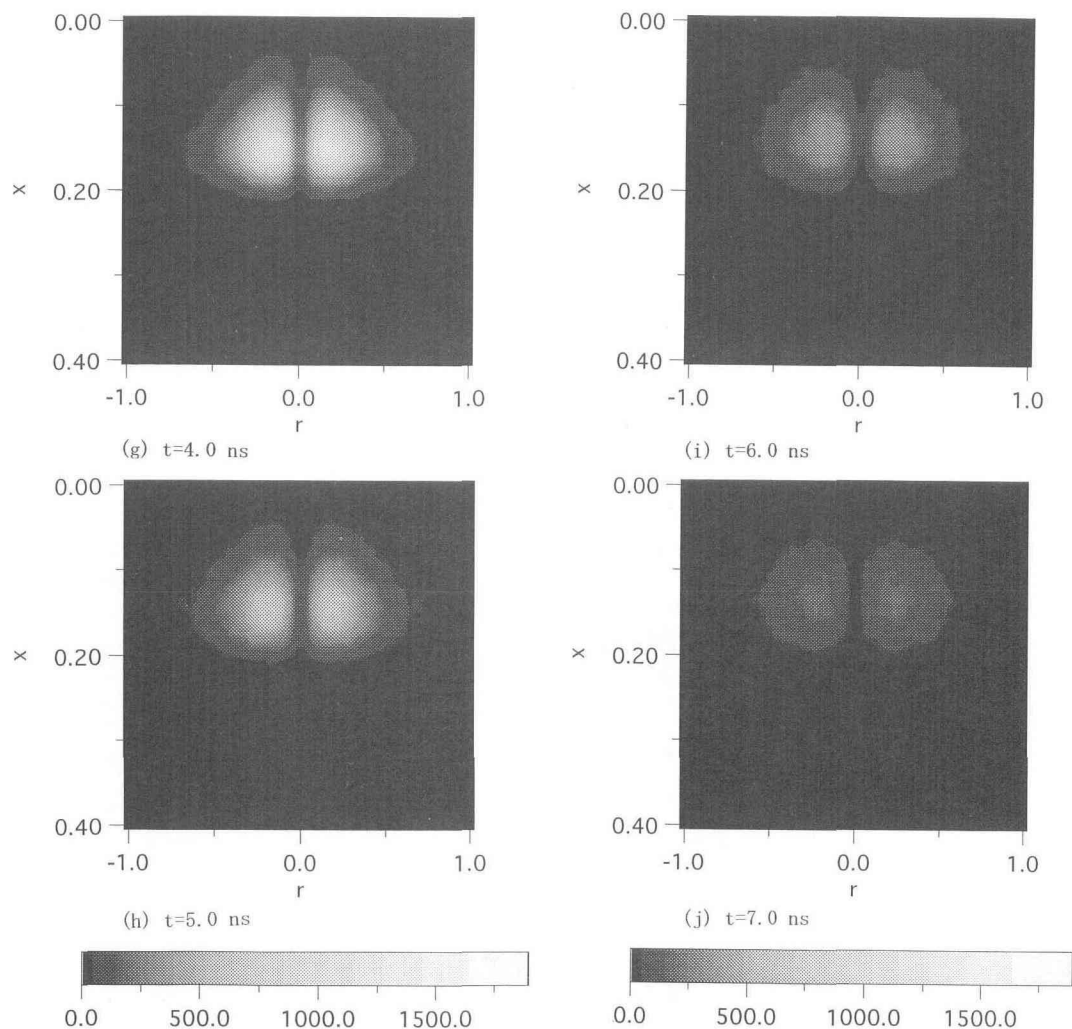


図3. (g)~(j)  $(x, r)$  座標における電子数分布(濃淡の度合は任意目盛り)

#### 4. ま と め

本解析では、 $\text{Cl}_2$ 固体から生成されるレーザーアブレーションプラズマ中の電子の振る舞いを、モンテカルロ法により解析した。時間と空間的位置に依存する電界ならびに中性粒子密度の条件下でのシミュレーションにより、電子が空間電荷による電位ポテンシャルの谷に局在して分布するとともに、その中で電子付着衝突過程が非常に頻繁に起こることによって短時間で消失しうることが明らかとなった。これにより、エッチング等の応用に必要な、解離生成種が豊富なプラズマを生成するには、外部電界等の助けが有効となることが示唆された。

参 考 文 献

- (1) S. R. Leone, F. X. Campos and G. C. Weaver, Proceedings of the Dry Process Symposium, p. 85 (1994)
- (2) J. Brannon, "Excimer Laser Ablation and Etching", The Education Committee American Vacuum Society (1993)
- (3) 例えば：望月，応用物理 第56巻 第1号，p. 2 (1987)
- (4) P. L. G. Ventzek, T. J. Sommerer, R. J. Hoekstra and M. J. Kushner, Appl. Phys. Lett., 63(5), 605 (1993)
- (5) G. L. Rogoff, J. M. Kramer and R. B. Piejak, IEEE Trans. on Plasma Sci., PS-14, p. 103 (1986)
- (6) N. L. Bassett and D. L. Economou, J. Appl. Phys., 75, p. 1931 (1994)
- (7) 「気体放電シミュレーション技法」電気学会技術報告（Ⅱ部）第140号