

모델링을 통한 Ar 플라즈마 중의 미립자 운동에 관한 연구

(Modeling and Analysis of Fine Particle Behavior in Ar Plasma)

임장섭* · 소순열

(Jang - Seop Lim · Sun - Yule So)

요 약

미립자 플라즈마란 입경이 수[μm]이하의 거의 일정한 크기를 가진 미립자가 다수로 생성 및 유지되면서, 정 또는 부의 전하를 가지고 기체 플라즈마 중에 부유하는 상태를 말한다. 플라즈마 프로세스에서는 이러한 미립자가 집적 회로에 증착되어 막의 열화, 회로 배선의 불량 및 단선 등의 악영향을 끼치는 것으로 인식되고 있으며, 이러한 부분에 대한 억제나 제어에 관한 연구가 진행되고 있다.

본 연구에서는 유체 모델을 이용한 시뮬레이션으로부터 방전 챔버내의 Ar 플라즈마의 현상을 이해하고, Ar 플라즈마 중에 미립자를 투입하여 그 움직임을 분석하여, 플라즈마 중의 미립자 운동의 해석 결과로서는, 하부 전극 면 위에 비교적 규칙성을 갖는 미립자가 배열하는 것을 확인할 수 있었다. 또한, 약 전리 플라즈마에서는 전지의 이동로가 크기 때문에 미립자의 대전량은 평균 전자 에너지에 크게 의존하는 것을 알 수 있었다.

Abstract

Recently, many researches for fine particles plasma have been focused on the fabrication of the new devices and materials in micro-electronic industry, although reduction or elimination of fine particles was interested in plasma processing until now on. In order to enhance their utilization, it is necessary to control and analyze fine particle behavior. Therefore, we developed simulation model of fine particles in RF Ar plasmas. This model consists of the calculation parts of plasma structure using a two-dimensional fluid model and of fine particle behavior. The motion of fine particles was derived from the charge amount on the fine particles and forces applied to them.

In this paper, Ar plasma properties using two-dimensional fluid model without fine particles were calculated at power source voltage 150[V] and pressure 0.5[Torr]. Time-averaged spatial distributions of Ar plasma were shown. The process on the formation of Coulomb crystal of fine particles was investigated and it was explained by combination of ion drag and electrostatic forces. And also analysis on the forces of fine particles was presented.

Key Words : 미립자 플라즈마, RF Ar Plasma, Poisson 분포, 쉬스 영역

* 주저자 : 목포해양대학교 해양전자통신공학부

Tel : 061-240-7122, Fax : 061-240-7283

E-mail : janylim@mmu.sc.kr

접수일자 : 2003년 10월 2일

1차심사 : 2003년 10월 9일

심사완료 : 2003년 10월 29일

1. 서 론

미립자 플라즈마란 입경이 수 [μm] 이하의 거의 일정한 크기를 가진 미립자가 다수로 생성 및 유지되면서, 양 또는 음의 전하를 가지고 기체 플라즈마

중에 부유하는 상태를 말한다. 이러한 미립자 플라즈마 연구는 우주항공 분야에서 시작되었으며, 현재 반도체 마이크로 산업에서 중요한 역할을 담당하고 있다. 그러나, 플라즈마 프로세스에서는 이러한 미립자가 집적회로에 증착되어 막의 열화, 회로 배선의 불량 및 단선 등의 악영향을 끼치는 것으로 인식되어, 지금까지의 반도체 분야에서는 이러한 물질의 제어 및 억제에 관한 연구가 진행되어 왔다[1,2]. 현재는 이러한 미립자의 형성으로부터 새로운 디바이스 및 재료 제작 등의 적극적인 연구가 진척되고 있다. 즉, 미립자 플라즈마의 특징을 이용하여 다른 물성을 가진 초분자 및 미립자가 플라즈마 중에서 규칙성을 갖고 격자상으로 배열하는 현상(쿨롱 결정)을 이용한 다층막 형성 등의 연구가 활발하게 추진되고 있다[3,4,5,6,7]. 그러나 이러한 미립자 플라즈마의 이용도를 더욱 증진시키기 위해서는 그 움직임을 명확히 분석할 필요가 있다. 따라서, 본 연구에서는 유체 모델을 이용한 시뮬레이션으로부터 방전 챔버 내의 Ar 플라즈마의 현상을 이해하고, Ar 플라즈마 중에 미립자를 투입하여 그 움직임을 분석하였다. 또한, 미립자간의 쿨롱 결정 현상을 이해 및 분석하고자 하며, 미립자의 대전 및 미립자에 작용하는 힘에 관하여 해석하고자 한다.

2. 모델링

2.1. 챔버 및 외부 회로

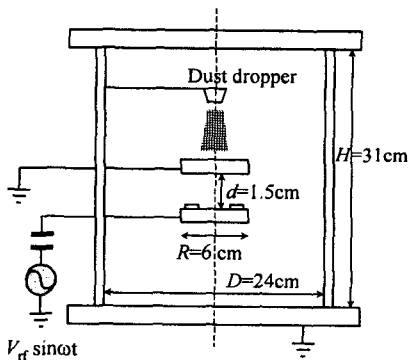


그림 1. 미립자 관측용 실험계
Fig. 1. The experimental discharge chamber for investigating fine particle behavior

본 시뮬레이션에서 모의한 실험계의 개략도를 그림 1에 나타내었다. 챔버의 사이즈는 직경(D) 24 [cm], 높이(H) 31[cm]의 원통형 구조를 가지고 있다. 전극 직경(R)은 6[cm]의 평판전극이며, 쿨롱 결정의 형성을 용이하게 하기 위해서 내경 2[cm], 외경 4[cm], 두께 0.15[cm]의 링이 하부 전극면 위에 설치되어 있다. 전극간격(d)은 1.5[cm]이며, 하부 전극에 RF 주파수의 교류 전압이 인가되어 있고, 상부 전극은 접지되어 있다. 전원 전압은 150[V]로 설정하였고, 가스 압력은 0.5[Torr], 블로킹 커패시터 용량은 40[pF]으로 설정하였다. 또한 상부전극으로부터 13 [cm] 높이에 미립자 투하기가 설치되어 있고, 방전 발생과 함께 그곳에서 미립자가 배포된다. 방전 가스는 Ar, 미립자는 입경 1.8[μ m] 및 질량 밀도 2.0×10^{-3} kg/cm³의 가교 아크릴 입자를 사용하였다.

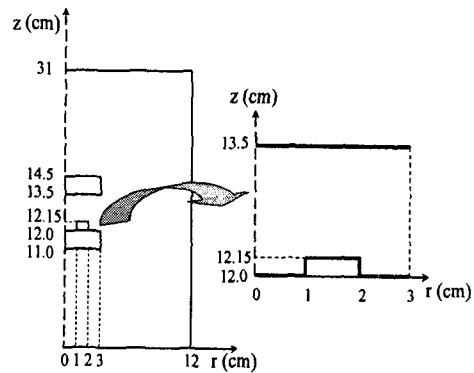


그림 2. Ar 플라즈마와 미립자 운동의 시뮬레이션을 위한 축 대칭 3차원 방전 공간 모델
Fig. 2. The present 3-dimensional discharge model for Ar plasmas and fine particle behavior

본 연구에서는 RF 플라즈마 특성에 관한 모델과 그에 따라 형성되는 미립자 모델로 분할하여 구성되었다. RF 플라즈마는 유체모델을 통하여 해석하였으며, 그림 1에서 볼 수 있듯이 방전 챔버가 축 대칭 구조를 형성하고 있으므로 대칭적 3차원 구조를 가진 2차원적 방전공간으로 시뮬레이션을 행하였다. 이러한 유체 모델 플라즈마에서 얻어진 특성을 통하여 미립자의 대전량 및 미립자에 작용하는 힘을 계산하고, 이로부터 운동 방정식을 설정하여 미립자의

속도 및 위치를 계산하였다. 또한 미립자 모델에서는 상·하부 전극사이에 쿨롱 결정이 관측되어지는 것으로부터, 시뮬레이션 공간을 챔버내의 양 전극간으로만 설정하였다 (그림 2 참조). 그리고 미립자에 의한 플라즈마의 영향은 무시하였다.

2.2. 유체 모델

본 연구에 채용한 유체모델은 연속 방정식, 전자 에너지 보존식 및 포아송 식 그리고 외부회로 모델로 구성되어 있다. 연속 방정식으로부터 각 입자의 밀도를, 에너지 보존식으로부터 평균 전자 에너지를 구할 수 있으며, 외부 회로 방정식으로부터 방전 전류 및 전압을, 포아송 식으로부터 방전 공간내의 전위 분포 및 국소 전계 분포를 구할 수 있다.

$$\frac{\partial N_j}{\partial t} = -\frac{\partial \Gamma_j}{\partial x} + S_j \quad (1)$$

$$\Gamma_j = W_j - D_j \frac{\partial N_j}{\partial x} \quad (2)$$

여기서 j 는 전자 및 양이온을 나타낸다. N_j 는 각 하전입자의 밀도, S_j 는 전자 충돌과 화학 반응에 의한 각 입자의 발생 및 소멸 항을 나타낸다. 또한 Γ_j 는 입자유속, D_j 는 확산 계수, W_j 는 이동속도를 나타낸다. 평균 전자 에너지 및 전계의 함수로 구해지는 각 파라메터를 결정하기 위해, 연속방정식에 에너지 보존식 및 포아송 방정식이 포함되어 진다.

$$\frac{\partial(\epsilon \cdot N_e)}{\partial t} + \frac{\partial q_e}{\partial x} = -\Gamma_e e E - N_e \cdot N k_L \quad (3)$$

$$\nabla^2 V = -\frac{\rho}{\epsilon_0} \quad (4)$$

여기서, q_e 는 엔탈피 유속(e 는 전자 전하), N 은 Ar 모가스 밀도, k_L 은 에너지 손실계수를 나타낸다. V 는 전극 포텐셜, ρ 는 실 전하 밀도, ϵ_0 는 진공 유전율을 나타낸다.

하전입자는 초기조건으로 방전 공간내에서 $1.0 \times 10^6 \text{cm}^{-3}$ 정도로 일정하게 분포하도록 설정하였으며, 전극표면에서 방출되는 2차 전자계수는 0.03으로 고려하였다. 방전 공간의 격자는 93×42 로 설정하였다.

2.3. 미립자 모델

본 모델은 유체 모델로부터 계산되어진 플라즈마 파라메터를 이용하여 미립자의 대전량을 구하고, 미

립자에 작용하는 힘으로부터 운동 방정식을 설정하여, 미립자의 속도 및 위치를 계산한다. 플라즈마 중의 미립자는 전자 및 이온이 충돌하는 것으로 대전하지만, 비평형 약 전리 플라즈마에서는 전자의 이동도가 크기 때문에 미립자는 음으로 대전하는 것으로 설정하였다. 미립자의 대전량은 거의 미립자 표면으로의 전자 전류 및 이온 전류로 결정되어지므로, 아래와 같은 연속 방정식으로 표현할 수 있다.

$$\frac{dQ}{dt} = I_e + I_p \quad (5)$$

여기서 Q 는 미립자의 대전량, I_e 와 I_p 는 각각 미립자 표면으로 흘러 들어가는 전자 및 이온 전류이다 [8]. 또한 미립자에 작용하는 힘으로서, 중력, 플라즈마 중의 전계에 의한 정전기력, 이온의 흐름으로 인하여 형성되는 이온 점성력, 미립자간 상호의 쿨롱력을 고려하였으며, 이로부터 미립자의 운동 방정식을 결정하였다[9].

$$M \frac{d\vec{v}}{dt} = \vec{F}_g + \vec{F}_e + \vec{F}_i + \vec{F}_c \quad (6)$$

여기서 M 은 미립자의 질량, v 는 미립자의 속도벡터를 나타내며, 축대칭 3차원에서는 아래와 같이 r 방향 및 z 방향으로 분할하여 표현할 수 있다.

$$\vec{v} = v_r \cdot \hat{r} + v_z \cdot \hat{z} \quad (7)$$

미립자에 작용하는 중력은 축방향으로의 움직임만이 존재하는 것으로 다음과 같은 식으로 나타낼 수 있다.

$$\vec{F}_g = -M \cdot g \cdot \hat{z} \quad (8)$$

여기서 g 는 중력 가속도이다.

정전기력은 플라즈마 중의 공간 전계에 의해 얻게 되는 힘으로서, 다음과 같이 표현한다.

$$\vec{F}_e = Q \cdot E = Q \cdot E_r \cdot \hat{r} + Q \cdot E_z \cdot \hat{z} \quad (9)$$

여기서 E_r 및 E_z 는 각각 r, z 방향으로의 전계이다. 이온 점성력은 다음과 같은 식으로 나타낼 수 있다.

$$\vec{F}_i = K_{mi} \cdot n_p \cdot m_p \cdot W_r \cdot \hat{r} + K_{mi} \cdot n_p \cdot m_p \cdot W_z \cdot \hat{z} \quad (10)$$

여기서 K_{mi} 는 이온과 미립자간의 운동 천이 계수, W 는 이온의 속도이다.

이외에 플라즈마 중의 열 균배를 통한 힘과, 가스의 유입으로 중성 가스 분자의 대류가 형성되며 이로 인한 중성 입자와의 충돌에 의한 힘 즉, 중성 점

성력 등이 존재한다. 그러나 본 논문에서 대상으로 하는 실험계에서는 이러한 힘을 고려하지 않았다.

3. 시뮬레이션 결과 및 고찰

3.1. Ar 플라즈마의 정상상태

그림 3은 Ar 플라즈마의 주기적 정상 상태에 대한 전자, 이온, 전계 및 전자 에너지의 RF 1사이클을 시간 평균한 분포를 보여주고 있다. 본 연구에서 고

려된 챔버 모델에서는 양 전극 간에 전계가 강하게 작용하여 플라즈마가 집중적으로 형성되는 것으로부터, 상·하부 전극간에 분포하는 각 입자의 특성에 대한 결과를 중점적으로 설명하고자 한다.

전자 밀도와 이온 밀도는 전극의 중심부에서 피크를 형성하는 분포를 취하고 있으며, 전극 중심부에서의 양·음의 전하가 거의 동일하게 형성되기 때문에 그림 3의 (c)와 같이 공간 전하 전계가 거의 제로로 분포되는 것을 볼 수 있다. 또한 양 전극 부근에

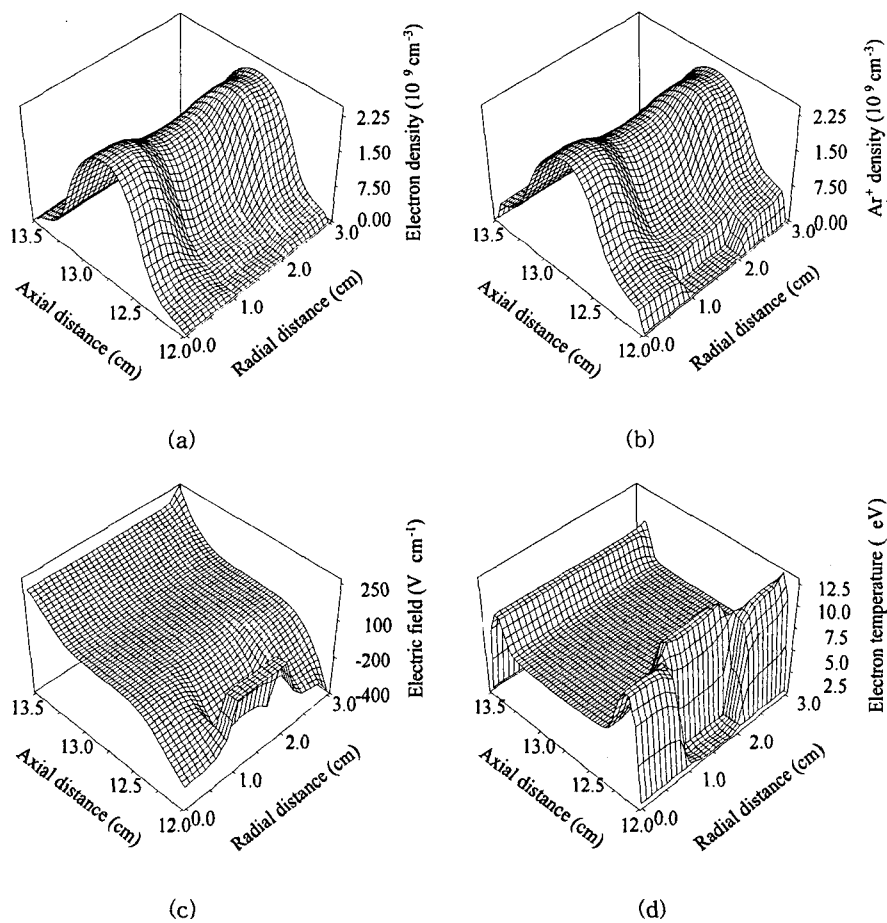
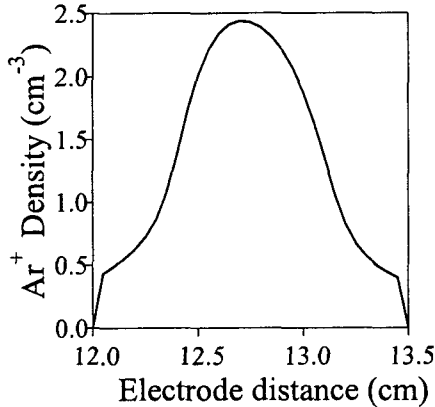


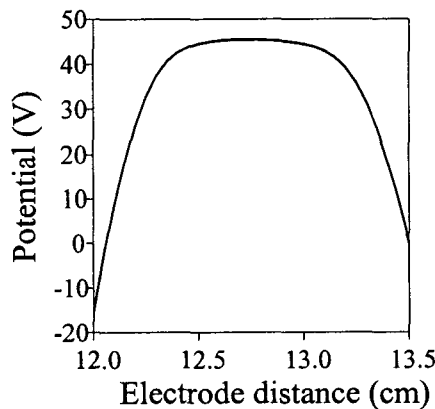
그림 3. 정상 상태에서의 Ar 플라즈마의 전극간 공간 분포. (a) 전자 수밀도, (b) 양이온 수밀도, (c) 전계 및 (d) 전위분포

Fig. 3. The spatial distributions of (a) electron number density, (b) positive ion number density, (c) electric field and (d) potential between two electrodes at steady state of Ar plasma

서는 이온 밀도가 전자 밀도보다 높게 분포하는 이온 쉬스가 형성되어 공간 전하 전계도 상당히 높게 분포하는 것을 알 수 있다[10].



(a)



(b)

그림 4. 방전 전극간 중심축 ($r=0$)에서의 (a) 양이온 수밀도 및 (b) 전위의 시간 평균 분포
 Fig. 4. The time-averaged spatial distributions of (a) positive ion number density and (b) potential in the space of two electrodes at $r=0$ [cm]

쿨롱 결정을 형성하기 위하여 구동 전극면 위에 설치한 링(돌출부분)의 주변에서 r 방향으로의 강한 전계가 형성되면서 r 방향으로의 밀도의 피크치가 z 방향의 중심부 ($r=0$)와 전극단 ($r=3$ [cm])에 존재하는 것을 알 수 있다.

그림 4는 z 방향으로의($r=0$) 이온 밀도 및 공간 전위 분포를 보여주고 있다. 구동 전극면의 체적이 접지면(접지 전극 + 챔버 벽)에 비하여 상대적으로 적음으로 인해서 접지 전극보다는 구동 전극에 국부적인 전계가 집중을 하게 되면서, 이온 밀도의 피크치가 구동 전극면으로 약간 이동되어 분포하는 것을 알 수 있다. 이로 인하여, RF 1사이클 동안 흘러 나가는 전자 및 이온 전류의 양에 차이를 형성하게 되고, 이것이 블로킹 커패시터에 축적되면서 그림 4(b)에서와 같이 구동 전극면에 -15 [V]정도의 음의 직류 바이어스 전압이 형성되는 것을 알 수 있었다.

3.2. 미립자 플라즈마의 운동

본 연구에서는 미립자가 하부 전극상에서 주로 형성되는 실험적인 결과로부터 미립자 모델의 계산을 전극간에서만 행하였다(그림 2 참조). 또한, 미립자의 형성으로 인한 Ar 플라즈마의 영향은 존재하지 않는 것으로 고려하여, 미립자 모델의 파라미터로서 Ar 플라즈마의 정상상태의 시간 평균치를 사용하였다. 시뮬레이션의 시간 간격(Δt)은 RF 1사이클(74 ns)로 설정하였다. 초기 투입 미립자 수는 100개로 하였고, 이러한 미립자를 $z=1.4\sim 1.5$ [cm], $r=0\sim 3$ [cm]의 범위에서 일정하게 분포시켰으며, 각각의 미립자의 초속은 160 [cm/s]로 설정하였다. 이는 미립자 투입기로부터 자유 낙하한 후에 미립자가 상부 전극에 도달하였을 때의 속도이다. 그림 5에서는 미립자 투입후의 0.1초까지의 시간별 분포를 보여주고 있다. 투입 직후, 미립자는 일정하게 낙하하지만, 약 0.002초부터 미립자의 대부분이 전극 밖으로 방출되기 시작하고, 약 0.1초 후에는 미립자의 80%가 전극간 밖으로 방출된다. 그러나 나머지 20%는 전극 중앙부($z=0.26\sim 0.32$ cm, $r=0\sim 0.14$ cm)에 위치하여 미립자 운을 형성한다. 0.1초 후부터 시뮬레이션이 끝나는 시점(2초)까지 미립자 운의 형성은 동일한 위치에서 지속되었다. 이러한 현상은 실험 측정을 통해서도 동일한 결과를 얻을 수 있었다.

그림 6에, 동일한 조건에서 측정된 실험결과를 보여주고 있다. r 방향으로의 시뮬레이션 결과보다 폭 넓게 분포하는 것을 볼 수 있지만, z 방향으로의 거의 일치하는 것을 알 수 있다.

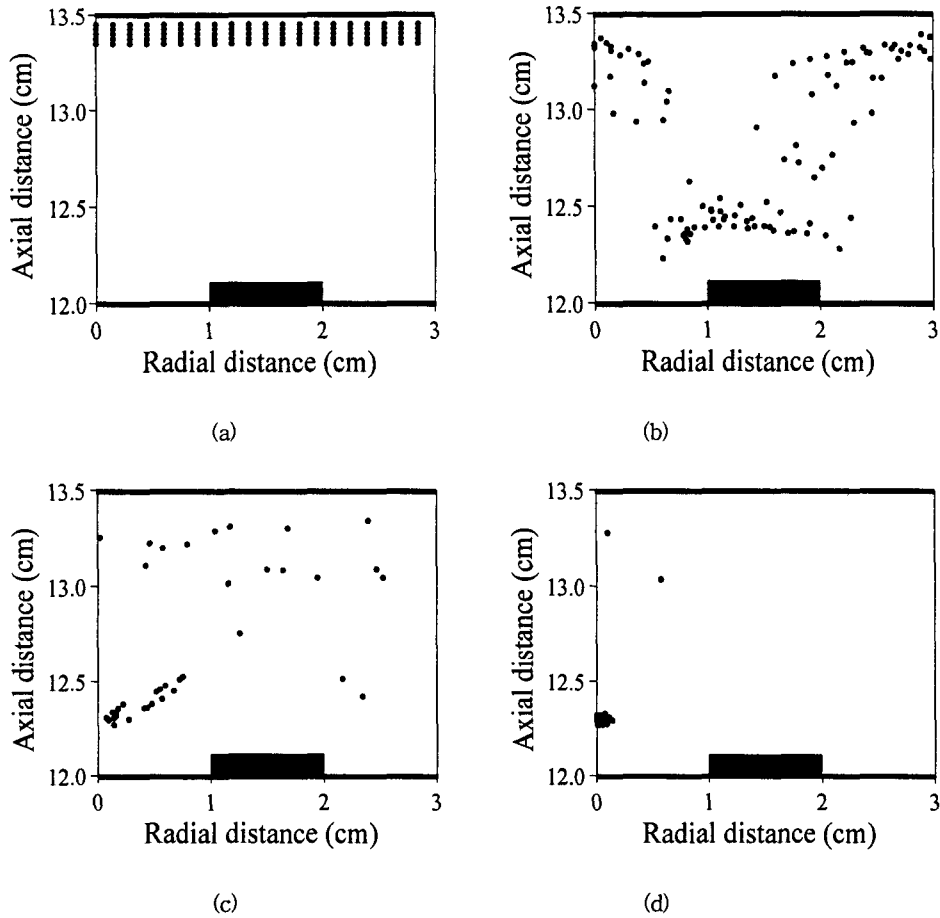


그림 5. 미립자 투입후의 시간별 전극간 공간 분포. (a) 0.0 초, (b) 0.002 초, (c) 0.02 초 그리고 (d) 0.1 초
 Fig. 5. The spatial distribution of fine particles between two electrodes at (a) 0.0, (b) 0.002, (c) 0.02 and (d) 0.1 seconds after dropping them

그림 7은 미립자에 작용하는 힘의 전극간 공간 분포를 보여주고 있다. 일반적으로 플라즈마에서는 실전하가 거의 제로에 가깝게 형성되는 벌크 영역과 양이온 전하가 상대적으로 높게 분포하는 쉬스 영역으로 구분된다. 벌크 영역에서는 공간 전하 전계가 거의 존재하지 않기 때문에 미립자들은 정전기력에 의한 힘에 의해 지배되고, 상호간에 쿨롱 반발력으로 일정한 간격을 유지하게 된다. 그러나 쉬스 영역에서는 높은 공간 전계가 미립자에 작용하게 되어 이온 점성력이 지배적으로 형성되게 된다. 이온 점성력 및

정전기력은 최대 10^{-10} [N] 정도로 형성되는 것에 비해, 중력(2.87×10^{-13} [N])의 영향은 매우 작은 것으로부터 미립자 운의 형성은 이온 점성력과 정전기력에 의해 결정되는 것을 알 수 있다. 하부 전극 부근에서 상부전극 방향으로 움직이고자 하는 정전기력과 이온 쉬스 영역에서 하부 전극 방향으로의 작용하는 이온 점성력이 상호간 절충되어서 그림 5와 같이 전극 중앙부($z=0.26 \sim 0.32$ cm, $r=0 \sim 0.14$ cm)에 미립자 운이 형성되는 것을 알 수 있다.

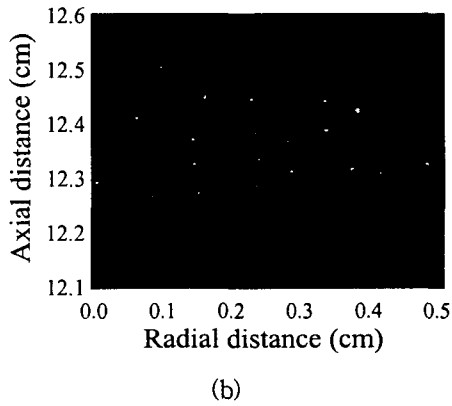
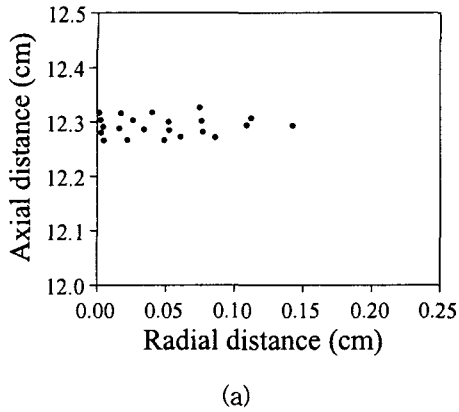


그림 6. 미립자 운이 형성되는 전극간 공간 분포의 (a) 시뮬레이션 결과 및 (b) 실험 측정 결과의 비교
 Fig. 6. The comparison of spatial distributions of fine particles between (a) simulation and (b) experimental results

4. 결론

본 연구에서는 플라즈마 중의 미립자 움직임에 관한 시뮬레이션 모델을 구축하고, RF Ar 플라즈마 중에서의 해석을 행하였다. RF 플라즈마에서 실질적인 플라즈마 상태인 벌크 영역과 정 이온 밀도가 상대적으로 높게 형성되는 이온 쉬스 영역으로 구분되는 특성을 확인하였다. 또한 상대적인 낮은 구동 전극의 체적비로 인한 밀도의 피크치의 변화 및 구동 전극면에서의 직류 바이어스 전압의 형성도 확인하였다.

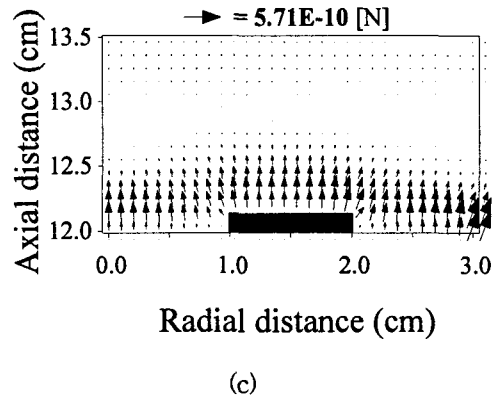
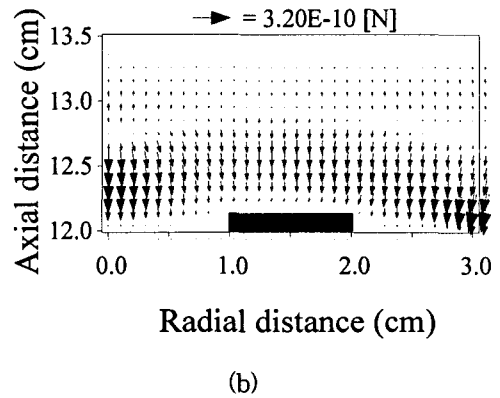
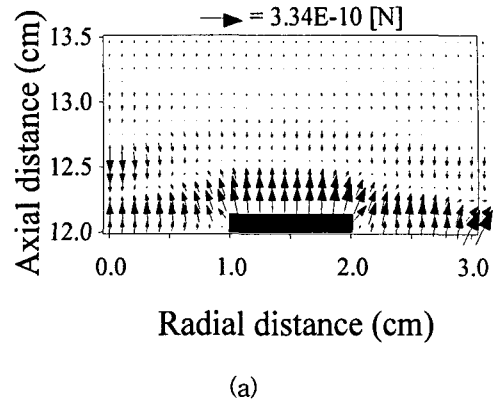


그림 7. 방전 전극간에서 미립자에 작용하는 힘의 공간 분포. (a) 총체적 힘, (b) 이온 점성력 그리고 (c) 정전기력
 Fig. 7. The spatial distributions of (a) total force, (b) ion drag force and (c) electrostatic force applied to fine particles between two electrodes

플라즈마 중의 미립자 운동의 해석 결과로서는, 하부 전극 면 위에 비교적 규칙성을 갖는 미립자가 배열하는 것을 확인할 수 있었다. 또한 미립자 운의 분포에 관해서는 실험 결과와 비교적 일치하는 결과를 얻을 수 있었다. 미립자에 작용하는 힘의 공간 분포를 분석함으로써, 이온 점성력 및 정전기력이 높게 작용하여 하부 전극 면 위에 미립자 운이 형성하도록 하는 것을 알 수 있었다. 또한, 약 전리 플라즈마에서는 전자의 이동도가 크기 때문에 미립자의 대전량은 평균 전자 에너지에 크게 의존하는 것을 알 수 있었다.

그러나 이러한 미립자 운동을 보다 정량적으로 해석하기 위해서는 쿨롱 결정을 유지하는 조건 및 그 구조 변화의 원인에 대한 연구가 요구된다.

References

- [1] M. Shiratani, H. Kawasaki, T. Fukuzawa, T. Yoshioka, Y. Ueda, S. Singh, and Y. Watanabe, "Simultaneous in situ measurements of properties of particulates in rf silane plasmas using a polarization-sensitive laser-light-scattering method", *J. Appl. Phys.*, Vol. 79, pp. 104-109 (1996).
- [2] T. Fukuzawa, K. Obata, H. Kawasaki, M. Shiratani, and Y. Watanabe, "Detection of particles in rf silane plasmas using photoemission method", *J. Appl. Phys.*, Vol. 80, pp. 3202-3207 (1996).
- [3] T. Fukuzawa, M. Shiratani, and Y. Watanabe, "Novel in situ method to detect subnanometer-sized particles in plasmas and its application to particles in helium-diluted silane radio frequency plasmas", *Appl. Phys. Lett.*, Vol. 64, pp. 3098-3100 (1994).
- [4] E. Stoffels, W. W. Stoffels, G. Ceccone, R. Hasnaoui, H. Keune, G. Wähl, and F. Rossi, "MoS₂ nanoparticle formation in a low pressure environment", *J. Appl. Phys.*, Vol. 86, pp. 3442-3451 (1999).
- [5] S. Veprek, S. Reiprich, and Li Shizhi, "Superhard nanocrystalline composite materials: The TiN/Si₃N₄ system", *Appl. Phys. Lett.*, Vol. 66, pp. 2640-2642 (1995).
- [6] H. Thomas, G. E. Morfill, V. Demmel, J. Goree, B. Feuerbacher, and D. Mohlmann, "Plasma Crystal: Coulomb Crystallization in a Dusty Plasma", *Phys. Rev. Lett.*, Vol. 73, pp. 652-655 (1994).
- [7] J. H. Chu and L. I., "Direct observation of Coulomb crystals and liquids in strongly coupled rf dusty plasmas", *Phys. Rev. Lett.*, Vol. 72, pp. 4009-4012 (1994).
- [8] J. E. Daugherty, R. K. Porteous, M. D. Kilgore, and D. B. Graves, "Sheath structure around particles in low-pressure discharges", *J. Appl. Phys.*, Vol. 72, pp. 3934-3942 (1992).

- [9] Andre Bouchoule, "Dusty Plasmas: Physics, Chemistry, and Technological Impact in Plasma Processing", Wiley publisher (1999).
- [10] Ho-Jun Lee, Dong-Hyun Kim and Chung-Hoo Park, "A Two-dimensional Steady State Simulation Study on the Radio Frequency Inductively Coupled Argon Plasma", *KIEE International Trans. on EA*, Vol. 2-C, No. 5, pp 246 (2002).

◇ 저자소개 ◇

임장섭 (林蔭燮)

1989년 2월 전남대학교 전기공학과 졸업. 1991년 2월 동 대학원 석사학위 수여. 1996년 2월 동 대학원 박사학위 수여. 1996년 8월 현재 목포해양대학교 해양전자통신공학부 부교수.

소순열 (蘇淳烈)

1996년 2월 전남대학교 전기공학과 졸업. 1998년 2월 동 대학원 석사학위 수여. 1999년 4월 일본 홋카이도 대학교 공학연구과 전자정보공학전공 박사과정 입학. 2003년 3월 동 대학원 박사학위 취득. 현재 동 대학원 연구원.