

플라즈마내 입자의 하전특성에 관한 연구

최석호* · 김곤호** · 안강호*

*한양대학교 기계공학과

**한양대학교 물리학과

(1997년 12월 24일 접수)

Monodisperse Particle Charging Characteristics in a DC-plasma

Seok Ho Choi*, Gon-Ho Kim** and Kang-Ho Ahn*

*Department of Mechanical Engineering, Hanyang University

**Department of Physics, Hanyang University

(Received December 24, 1997)

요 약 - 공정 플라즈마내에서 입자의 거동은 하전되는 입자의 극성과 하전량에 따르게 된다. 따라서 본 연구에서는 플라즈마내에서 입자의 거동을 이해하기 위한 기초 작업으로 입자의 하전 특성을 측정하였다. 본 연구에 사용된 단분산 입자는 직경 0.05 μm , 0.07 μm , 0.1 μm , 0.2 μm 으로 이들 입자를 DC-공기 플라즈마내에 주입하여 이들의 하전량과 하전 극성 변화를 Faraday Cup을 이용하여 측정하였다. 본 실험에서 입자의 하전량과 하전 극성은 주입 입자의 크기와 농도 및 플라즈마 발생조건 즉, 반응 압력, 전압 등에 영향을 받을 수 있었으며 입자 당 $10^3 \sim 10^5$ 의 평균 하전 수를 갖음이 관찰되었다.

Abstract - Since the particles are highly charged in process plasmas, the dynamics of the particles are concerned principally with the effect of the charging amount and polarity. In order to investigate the charging effect of the particles in the plasmas, the known sizes of the mono-dispersed particles with 0.05 μm , 0.07 μm , 0.1 μm and 0.2 μm diameter are introduced into the DC air-plasmas. The characteristics of the charged particles are measured with a Faraday cup. Results show that the particle charging polarity depends on the concentrations and sizes of the particles and the condition of plasma generation, operating pressure, and power. It is also found that the number of charges per a particle is in the ranges of $10^3 \sim 10^5$.

1. 서 론

반도체 공정에서는 박막을 형성하는 CVD 공정과 식각공정이 필수적이다. 이들 공정은 최근 습식 방법에서 플라즈마를 이용한 건식 방법으로 공정이 이전되고 있는 추세로써, 특히, 건식 식각 공정에서 플라즈마는 식각 가스분자의 해리에 작용하고 웨이퍼 표면에서의 화학반응을 촉진하며 스퍼터링에 의한 식각 반응을 활성화한다. 이러한 반응의 결과 웨이퍼 표면으로부터 혹은 용기의 표면으로부터 많은 양의 입자(여기서는 '입자:particle'이라 한다)가 플라즈마내에 발생한다[1-7]. 이러한 입자들은 반응기 외벽 등에 침착하여 있다가 공정 진행 중에는

반응기내에 부유하게 되며, 공정종료시 웨이퍼 표면으로 침착하게 된다. 이와 같이 웨이퍼 표면에 침착된 입자는 반도체 회로의 불량률을 초래하여 공정 수율을 저하시키는 매우 큰 요인이 되고 있다. 따라서 플라즈마내에서 발생하는 입자의 제어를 위하여 플라즈마내의 입자 거동에 관한 연구는 활발히 진행되고 있다[1-7].

플라즈마내 입자의 거동을 연구하기 위해서는 플라즈마의 특성과 그 내부에 떠있는 입자의 하전상태에 관한 연구가 필수적이다. 부유 입자는 플라즈마와의 충돌로 인하여 전자의 흡착 및 입자의 표면 전자를 잃게 함으로써 전하를 띄게 된다. 전하를 갖은 하전 입자들은 플라즈마내의 전기장에 의하여 거동에 영향을 받게 되므로

입자의 하전량과 하전 극성은 이들의 운동에 큰 영향을 미치는 변수이다.

입자의 하전 현상에 관한 대부분의 연구는 입자를 용기 내에 분사하고 전자빔 혹은 이온빔을 조사하여 입자와 충돌시킴으로써 이때 발생하는 입자의 하전 현상을 관찰하였다[5]. 이에 비하여 실제 플라즈마내에서의 입자의 하전 현상에 관한 연구는 현상의 중요성에도 불구하고 활발하지 못하며, 플라즈마내 하전된 입자의 외장(sheath) 근처의 거동에 관하여 광학적인 방법을 통한 연구가 일부 수행되고 있다[4]. 이와 같이 플라즈마내에서 전자와 입자간의 충돌시 발생하는 전자 흡착반응에 대한 연구가 진행되고 있으며, 플라즈마 특성에 따라 변화하는 충돌 외장(collisional sheath)내에 존재하는 이온들과 높은 에너지의 전자와 입자간의 충돌을 무시할 수 없는 환경, 즉 유동의 흐름을 따라 입자들이 외장에 유입된 경우에 대해서는 고려하지 않고 있다. 이러한 상황에서 하전된 입자의 공간 내 부유 정도 및 체류 시간 등은 플라즈마내의 전위 분포에 따라 혹은 입자의 유입 속도에 따라 달라지게 되어 입자의 표면 전하특성의 변화를 유발하게 된다. 현재 입자의 하전 현상에 사용되는 모델은 전자빔 혹은 이온빔 실험에서 얻은 하전입자 빔과 입자의 반응결과를 기초로 하고 있어 플라즈마내에서와 같이 입자의 주변에 충분한 전하가 존재하는 경우에는 입자의 하전 현상을 설명하기에는 미흡하다.

플라즈마내의 입자의 거동을 보다 명확히 해석하기 위하여 일차적으로 본 연구에서는 플라즈마의 특성이 입자의 하전 특성변화에 미치는 영향을 관찰하였다. 반응압력과 전압을 변화하여 플라즈마 특성을 조절하였으

며 하전입자의 밀도와 크기를 변화하여 플라즈마 특성이 입자의 하전 현상에 미치는 영향을 관찰하였다.

2. 실험 장치

본 실험의 개략도는 Fig. 1과 같으며 다음과 같은 요소들로 구성되었다. NaCl 용액이 들어있는 분무기(atomizer)는 압축공기에 의해 NaCl 용액 입자를 발생시켰다. 이렇게 분무된 NaCl 용액 입자는 수분을 함유하고 있으므로 실리카겔이 들어있는 확산건조기(diffusion dryer)를 통과시켜 수분을 제거하여 고체상태의 NaCl 입자를 형성하였다. 이러한 건조과정을 통하여 발생된 NaCl 입자는 정전기를 띄고 있어 α 방사선원인 Po^{210} 을 통과시켜 입자를 전기적으로 중화시킴으로서 하전량 즉, 양전하와 음전하를 갖는 입자의 분포가 Boltzmann 평형상태를 이루게 하였다. 이렇게 처리된 입자는 DMA(differential mobility analyzer)[8]를 통하여 기하학적 표준편차가 1.05인 단분산 입자를 발생시켰으며 이 단분산 입자는 전하를 띄고 있어 다시 Po^{210} 에 노출시켜 Boltzmann 평형상태에 이른 전기적으로 중화된 입자를 만들었다. 이 때 이들 입자를 플라즈마 반응기에 주입하기 전에 희석장치를 통과시켜 입자의 농도를 조절하고, 반응기에 주입되는 입자의 농도는 응축핵 계수기(CNC)로 측정하여 주입되는 입자의 크기와 농도를 정확히 조절할 수 있다. 유입 입자의 개수는 수 1000에서 수 10,000개/cm³가 되도록 하였으며 입자의 크기는 0.05~0.2 μm 가 되도록 조절하였다.

본 실험에서는 플라즈마내 입자의 하전 현상을 관찰

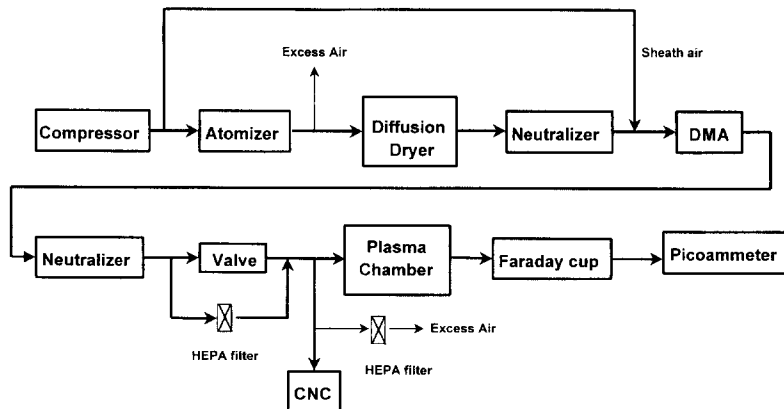


Fig. 1. Block diagram of the experimental set-up.

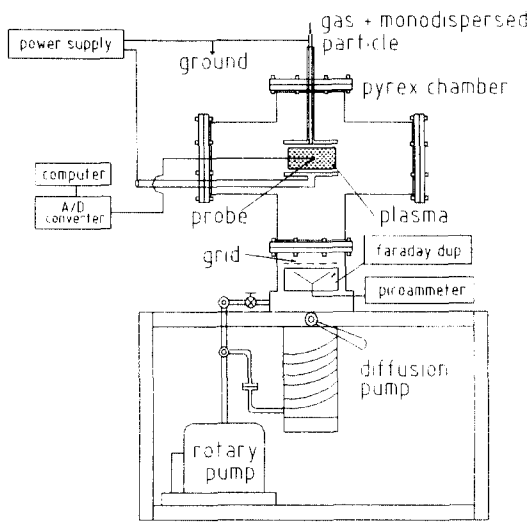


Fig. 2. Plasma chamber.

하기에 적정한 플라즈마 조건을 마련하기 위하여 플라즈마 생성시 발생하는 RF등의 변수 등을 최소화할 수 있는 DC 글로우 방전을 이용하여 플라즈마를 발생하였다. 본 연구에 사용된 플라즈마 반응기의 개략도는 Fig. 2에 나타내었다. 이 반응기의 크기는 직경 15 cm의 십자형 pyrex로 되어 있다. 전술한 입자 발생장치에서 만든 단분산 입자를 반응용기의 위쪽 가스 주입관을 통하여 유입되며, 입자의 carrier 가스로는 공기를 사용하였다. 가스 유입관 끝에 붙은 직경 10 cm, 두께 0.5 cm의 스텐레스 원판(상단의 전극: 접지됨)과 마주 보고 있는 같은 크기의 원판의 전극을 사용하여 전극간격을 조절할 수 있도록 설계되었으며 원판은 극판외 다른 물체와의 방전을 제어하기 위하여 두께 0.5cm의 테프론으로 절연하였다. 하단의 전극은 -1.0 kV DC까지 전압이 인가될 수 있도록 하였다. 실험은 유입 공기에 의한 운전 압력 350 mTorr 및 700 mTorr에서 수행하였으며 이때 전극에 가해진 전압은 -450V로 일정하게 유지하였다. 반응기내 압력은 진공펌프의 펌프 배기 속도를 일정하게 하고 반응기 내로 유입되는 공기의 유량을 변화시켜 조절하였다.

플라즈마의 특성은 정전 탐침기를 이용하여 공간내의 플라즈마 전위, 전자밀도, 전자온도 등을 측정하였다. 탐침기는 탐침면에 형성되는 외장의 크기를 고려하여 (디바이 차폐길이의 약 10배) 직경 6 mm의 Ta를 이용하였으며 자료는 A/D, D/A 변환기로 +30 V에서 -30 V까지의 전위 변화에 대한 4096개의 탐침 전류 및 전압

을 측정하여 플라즈마 밀도, 전자온도 및 플라즈마 전위를 분석하였다. 탐침기는 공간내의 임의의 자리에 위치할 수 있도록 설계되었으나 본 실험에서는 원형 전극(전극간의 간격 10 cm) 앞에 형성되는 충돌외장[9] 밖(전극으로부터 5 cm)에 위치하여 플라즈마 본체의 특성을 측정하였다.

Fig. 2에서와 같이 입자들은 상단의 극판 중앙으로부터 공기 carrier 가스와 함께 유입되어 기체의 흐름을 따라 전극간에 발생된 플라즈마와 반응하게 된다. 이때의 기체 흐름은 전극간의 플라즈마 영역에서는 빠르게 진행하고 하단 전극을 비껴 흐르게 되어 하단 전극 앞에서는 흐름의 변화를 갖게 되며 이 부분은 반응기 내 하단 전극 앞에서 형성되는 외장 영역과 일부 중복되어 유입 입자들은 유입 속도에 따라 중앙의 플라즈마와 반응하며 일부는 외장 내의 플라즈마와 반응하게 될 것이다.

플라즈마 반응 영역을 통과한 입자들은 반응 가스와 함께 진공펌프의 배기에 의해 기체의 흐름을 타고 배기구 쪽으로 배출되게 된다. 이때 반응기의 배출되는 입자를 모두 포집하기 위해 배기구 부분에 입자 포집용 고효율 필터(HEPA filter)를 이용한 Faraday Cup을 제작·설치하여 배기구 쪽으로 배출되는 입자의 하전량을 측정할 수 있도록 하였다. 따라서 Faraday cup에 포집되는 입자의 전하 값은 순수 주입 입자에 의한 하전량뿐 만 아니라 플라즈마 전자에 의한 영향이 포함될 수 있다. 본 연구에서는 Faraday cup 앞에 그리드를 설치하여 -12 V의 음 전위를 주어 플라즈마 전자의 Faraday cup으로의 유입을 최소화하였다. 또한 그리드에 형성된 전위 장벽을 넘는 높은 에너지를 갖는 전자들은 Faraday cup에 유입됨으로 하전된 입자에 의한 전류와 구분하기 어려움으로 이들 전류를 구분하기 위하여 입자를 반응기에 주입하였을 경우와 주입하지 않았을 경우에 Faraday cup에서 얻은 전류차이를 측정하여 순수 입자에 의한 하전량을 측정할 수 있었다. Faraday cup의 하전량은 Keithley사의 picoammeter Model 486을 이용하여 측정하였다.

3. 실험 결과

플라즈마 특성의 공간내 분포는 다음과 같다. Fig. 3은 공기를 반응 가스로 사용하여 운전압력이 350 mTorr와 700 mTorr 일 때 정전 탐침법으로 측정된 플라즈마 전위의 공간내 분포를 나타낸 것이다. 그림의 x-축

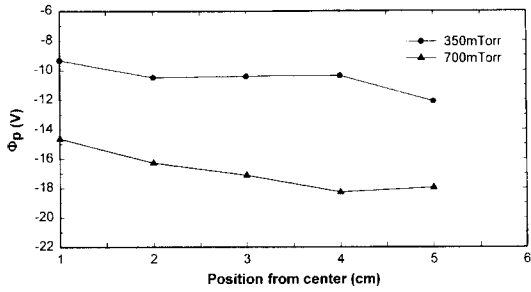


Fig. 3. Plasma potential distribution as function of position from the center of the electrode, power: -450 V.

은 전극의 중앙에서부터의 거리를 나타내며 그 위치에서의 플라즈마 전위를 y-축에 나타내었다. 이때 전극에 적용된 전압은 -450V이며 전위는 양극판의 중앙에서 반경방향으로 측정하였다. 그림에서 보는 것과 같이 반응기의 벽은 접지로부터 부유되어 있는 절연체(pyrex)로써 플라즈마의 상대전위는 음의 값을 가질 수 있으며, 압력이 높으면 플라즈마의 특성이 불균일해 지는 것을 볼 수 있다. Fig. 4는 Fig. 3과 같은 조건에서의 공간 내 플라즈마 전자의 온도를 측정한 것으로 그 분포가 3~4 eV의 값을 갖고 있으며 반경방향으로 불균일한 분포를 나타내고 있다. Fig. 5는 Fig. 3과 같은 조건에서 플라즈마 공간내 전자밀도 분포를 나타내었으며 압력이 높을 경우 전자밀도가 증가하는 것을 보여주고 있다. 전자밀도의 공간내 분포는 그림에서 보는 바와 같이 극판의 중앙부에서 낮고 극판의 가장자리로 갈수록 전자밀도가 증가하다 감소하는 것을 볼 수 있다. 따라서 공간 내 플라즈마 특성 분포는 반경방향의 변화량이 압력이 증가함에 따라 더욱 심해지고 있음을 알 수 있다. 이는 반응기의 특성에 기인하는 것으로써 탐침에서 5 cm 위에 위

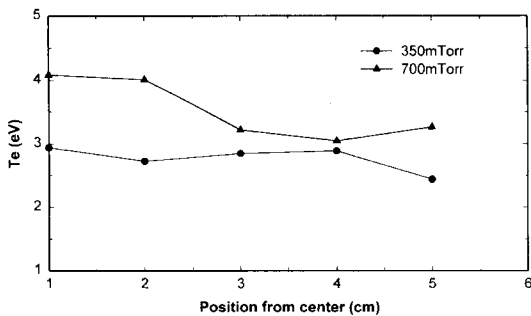


Fig. 4. Electron temperature distribution as a function of position from the center of the electrode, power: -450 V.

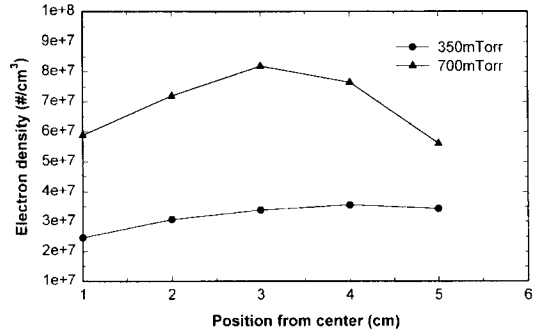


Fig. 5. Electron density distribution as a function of position from the center of the electrode, power: -450 V.

치한 전극의 중심으로부터 입자와 carrier 가스가 함께 주입되고 있어 유입가스의 흐름이 공간 내 발생 플라즈마의 불 균일도에 영향을 주고 있음을 알 수 있다.

Fig. 6은 반응기의 압력이 350 mTorr이고 유입가스의 유량이 3.33 sccm, 전극 전압이 -450 V인 경우 플라즈마에 주입된 단분산 입자 크기와 농도에 따라 Faraday cup에 유도되는 전류를 측정할 결과를 나타낸 것이다. 이때 반응기로 주입된 단분산 크기의 입자는 플라즈마를 통과하는 동안 그 크기가 변하지 않는 것으로 간주하였는데 이는 반응기가 공기로 차 있으므로 화학적 반응이 일어나지 않는 것으로 보았다. 또한 본 결과는 반응기에 입자를 주입했을 때와 주입하지 않았을 때에 Faraday cup에 흐르는 전류의 차이를 측정할 것이므로 입자에 의해 유도된 전류만 측정할 것으로 볼 수 있다. 이 그림에서 입자의 농도가 증가함에 따라 전류의 양이 증가하는 것을 알 수 있으며, 입자의 하전 극성은 입자

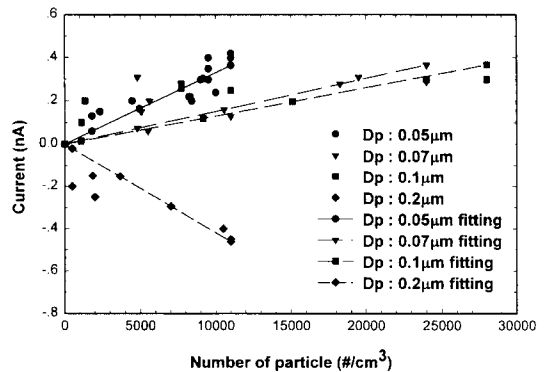


Fig. 6. Faraday cup current with particle concentration aerosol flow: 0.2 lpm, operating power: -450 V and pressure: 350 mTorr.

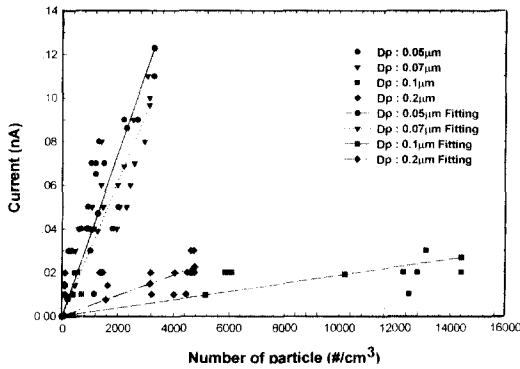


Fig. 7. 가스 유량 5 sccm, 기판 bias 전압 200 V일 때 질소 대 메탄 가스비(N₂/CH₄ 비)의 변화에 따른 a-C:H(N) 박막의 FT-IR 스펙트럼.

가 0.2 µm일 때는 음(-)으로 하전된 것을 볼 수 있으나, 그 이외의 입자 크기에 대해서는 양(+)으로 하전된 것을 볼 수 있다.

플라즈마 반응기 내의 압력이 700 mTorr이고 전압이 -450 V인 경우, 플라즈마내에 단분산 입자를 주입하여 입자의 하전량과 하전극성을 측정할 결과를 Fig. 7에 나타내었다. 이 경우 모든 입자가 양(+)으로 하전되었으며 입자크기에 따른 하전량의 상관관계는 뚜렷이 보이지 않지만 입자 농도가 증가할수록 Faraday cup에 유도되는 전류는 거의 직선적으로 증가하는 것을 볼 수 있다. 이때 반응 압력이 증가하면 유입되는 가스의 양과 가스의 유입 속도가 증가하게 되며 이때 입자의 유입 속도도 증가하게 된다. 따라서 상단의 전극 중앙에서 공기 carrier 가스와 함께 유입된 입자들은 높은 압력조건에서 빠른 속도로 유입하여 입자들은 전극간에 형성되어 있는 플라즈마 반응보다 하단 전극 앞에 형성되어 있는 외장 내의 플라즈마와 반응할 확률이 증가하게 된다. 또한 Fig. 6에서의 결과와 같이 낮은 압력에서도 입자의 크기가 크면 입자의 질량도 상대적으로 증가하게 됨으로 공간내의 확산은 줄고 carrier 가스의 흐름에 따라 입자는 진행하게 되어 큰 입자의 경우도 외장 내의 플라즈마와 반응하여 전하를 갖게될 확률이 증가하게 된다. 외장내의 전자는 외장 전위를 극복하여 유입된 높은 운동에너지를 갖는 전자 군으로 이들 전자와 입자의 충돌시 유입입자의 이온화 확률은 높아지게 됨으로 높은 운전 압력 혹은 크기가 큰 입자들은 본 반응기내에서 반응 후 양전하를 갖는 현상이 발생하는 것으로 사료되며 이에 대한 보다 세밀한 연구가 요구된다.

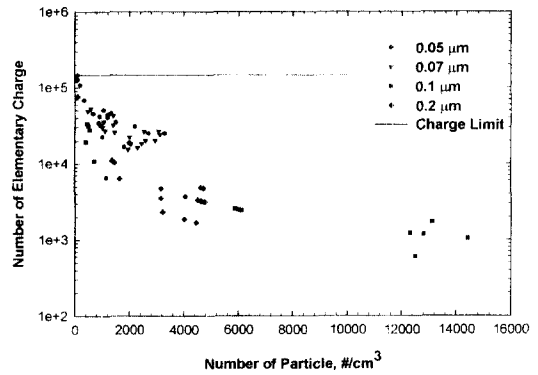


Fig. 8. 가스 유량 5 sccm, 기판 bias 전압 200 V일 때 질소 대 메탄 가스비(N₂/CH₄ 비)의 변화에 따른 a-C:H(N) 박막의 bandgap 에너지 변화.

Fig. 7의 조건에서 구한 실험 데이터를 정리하여 단일 입자당의 하전량을 다음과 같은 식에서 구할 수 있으며, 플라즈마 반응기에 유입된 입자는 모두 Faraday cup에 포집된 것으로 가정하면 입자당 하전 수, n_p 는 다음과 같이 나타낼 수 있다.

$$n_p = \frac{I}{1.6 \times 10^{-19} Q C} \quad (1)$$

여기서 I 는 Faraday cup에 흐르는 전류, Q 는 유량, C 는 입자의 농도를 나타낸다. 이 결과를 Fig. 8에 나타내었으며 입자당 하전량이 약 $10^3 \sim 10^5$ 개 정도로 매우 높게 하전된 것을 볼 수 있다. 입자의 크기에 따른 하전수는 크게 변하지 않고, 입자의 농도가 증가할수록 하전 수가 급격히 감소하는 것을 볼 수 있다. 이러한 현상은 입자의 농도증가에 따라 입자에 부착된 총 하전량은 증가하나 입자와의 반응시 반응공간내 플라즈마의 총 전하가 분산되어 단일 입자당 하전수는 감소하는 것으로 사료된다.

본 계산에서는 입자의 손실을 고려하지 않았지만 실제로 반응기 내부에서의 입자 손실은 불가피한 것으로 보이며, 이 손실은 Brown 확산, 판성에 의한 손실, 그리고 하전에 의한 정전손실들이 있으나 그 양을 정확히 예측하기는 매우 어려운 것으로 보인다[10].

이상의 실험결과를 보면 NaCl 단분산 입자의 전체 하전량은 입자의 농도에 비례하며, DC 글로우 방전 플라즈마 내에서 하전 극성은 양(+)과 음(-)을 모두 갖게 됨을 알 수 있다. 또한 단일 입자의 하전량은 $10^3 \sim 10^5$ 으로 매우 높은 것으로 나타났다.

입자가 하전되었을 경우 입자의 표면에는 전계가 생기게 되며 입자표면의 하전량이 증가할수록 이 전계 값은 커지며 어느 한계에 도달하면 입자는 스스로 전자나 이온을 입자표면에서 방출하게 된다. 이를 하전 한계라 하며 구형입자의 이온 하전 한계는 다음 식과 같이 나타난다[10].

$$n_i = \frac{D_p^2 E_L}{4e} \quad (2)$$

이 식에서 n_i 는 구형입자의 하전한계이며, E_L 은 입자의 표면에서 스스로 이온이 방출될 수 있는 표면전계로 그 값은 7×10^5 stV/cm이다. 입자의 농도증가에 따른 플라즈마내부의 이온 양이 변하지 않는 것으로 가정하여 식 (2)에 직경 $0.2 \mu\text{m}$ 입자의 하전 한계를 Fig. 8에 직선으로 표시하였다. 이를 실험결과와 비교하여 보면 입자의 하전량은 같은 order에 있는 것을 볼 수 있으며 본 연구에 사용된 플라즈마 상태 내로 유입된 입자들은 거의 하전 한계에 근접한 값을 갖는 것으로 간주된다. 이론 값과 실험결과를 정확히 비교하기 위해서는 보다 정교한 실험기법이 도입되어야 할 것으로 사료된다.

4. 결 론

본 연구에서는 DC글로우 방전 플라즈마 내부에 단분산 입자를 주입하였을 경우 입자의 하전량과 하전극성을 Faraday cup을 이용하여 측정할 수 있는 기법을 개발하였으며 관찰하였다. 플라즈마의 공간내 특성은 유입 가스의 흐름에 영향을 받아 분포하였으며, 특히 전극 앞에 형성되는 충돌 외장 내에서의 입자와 플라즈마의 반응에 의해 입자의 하전 특성에 많은 영향을 미치고 있

음이 관찰되었다. 하전량 측정 결과 입자의 농도가 증가할수록 단일 입자당 하전량은 감소하였으며 그 범위는 $10^3 \sim 10^5$ 개 정도였으며, 이는 입자의 하전 한계에 근접한 것으로 사료된다.

감사의 글

본 연구는 1996년도 교육부 학술연구조성비(ME96-H-01) 지원에 의해 수행되었기에 이에 감사드립니다.

참고문헌

1. Igor Alexeff and Marshall Pace, *IEEE Transaction on Plasma Science* **22**, 136 (1994).
2. Chunshi Cui and J. Goree, *IEEE Transactions on Plasma Science* **22**, 151 (1994).
3. H. Fujiyama, H. Kawasaki, S. C. Yang, and Y. Matsuda, *Jpn J. App. Phys* **33**, 4216 (1994).
4. 연충규, 양일동, 황기웅, *한국진공학회지* **3**, 179 (1994).
5. R. C. Hazelton and E. J. Yadlowsky, *IEEE Transactions on Plasma Science* **22**, 91 (1994).
6. B. Walch, M. Horanyi, and S. Robertson, *IEEE Transactions on Plasma Science* **22**, 97 (1994).
7. S. J. Choi and M. J. Kushner, *IEEE Transactions on Plasma Science* **22**, 138 (1994).
8. 안강호, 김남효, 이종호, 배귀남, *대한기계학회논문집(B)* **20**, 2005 (1996).
9. G.-H. Kim, N. Hershkowitz, D. A. Diebold, and M.-H. Cho, *Phys. Plasmas* **2**, 3222 (1995).
10. William C. Hinds, *Aerosol Technology*, John Wiley & Sons, (1982).