

低気圧誘導結合型高周波放電プラズマのプラズマ制御 パラメーターとプラズマパラメーターに関する研究(その1)

長濱 治男*

Experimental Studies on the Relation between the Plasma Control Parameter and Plasma Parameter of Inductively Coupled R.F. Discharge in the Low Pressure (Part 1)

Haruo Nagahama

When applying plasma, many different plasma conditions such as the case where a low electron temperature is required, the case which is uniform in the wide area of the plasma electron density are required. To create plasma, the plasma control parameter of sample gas pressure p , ionizing voltage V_s or ionizing electric power P_a is important. Moreover, it is necessary to investigate a basic plasma parameter of the electron temperature T_e and electron density N_e of the generated plasma.

In this paper, examining relation between the plasma control parameter and plasma parameter experimentally is reported.

Keywords: High frequency discharge, plasma, sample gas pressure, ionization electric power,
electron density, electron temperature

1. まえがき

誘導結合型および容量結合型高周波放電は、直流放電とちがい無電極であるため電極材料から放出される不純物の混入が避けられて、純粋なガスでのプラズマが生成できる有用な方法である。

このため、高周波放電はプラズマ化学やプラズマ CVD や各種イオン源およびガスレーザ用プラズマ源などに応用され、重要視されている。

近年、地球温暖化対策として CO_2 ガスを排出しない発電システムである太陽光発電が注目され、太陽光発電産業は年率 40~50%以上もの成長を遂げている。現在、世界で生産されている太陽電池の 90%近くは結晶シリコン系太陽電池である⁽¹⁾。多結晶シリコン太陽電池はシリコン基板のコスト比率が高いため、製品コストも高く、このため太陽電池の発電コストは一般的な商用電力に比べてもまだ高くなっている⁽²⁾。発電コストを低減するためには、資源の問題が残っているが、製品コストの安い薄膜系微結晶シリコンを用いる大面積、高速堆積技術を利用するプラズマ CVD

* 電気電子情報工学科

研究が必須の課題となっていて⁽³⁾、プラズマ研究の果たす役割がますます重要になっている。

プラズマ CVD には、電波法により周波数が 13.5MHz および 27MHz の高周波を用いる高周波放電方式が用いられている。直流放電、高周波放電に関わらず、気体の絶縁破壊電圧(以下、放電開始電圧と呼ぶ)は気体の圧力 p と電極間距離 d に依存し、パッシェンの法則としてよく知られていて、放電開始電圧 V_s は、

$$V_s = \frac{Bpd}{\ln \left[\frac{Apd}{\ln \left(1 + \frac{1}{\gamma} \right)} \right]} = \frac{Bpd}{Const + \ln(pd)} \quad (1)$$

で与えられている⁽⁴⁾。ここで、 A, B は気体の種類によって異なる係数であり、 γ は陰極に衝突する正イオン 1 個あたりに放出される平均二次電子数である。

容量結合型高周波放電の場合には、距離 d だけ離れた平面状、湾曲状、リング状の対面電極が配置されているので、放電開始電圧 V_s は試料ガス圧 p と電極間距離 d の関数となる。また、誘導結合型高周波放電の場合には数巻きのコイルを用いているため対面する電極がないので、放電開始電圧 V_s は試料ガス圧 p のみの関数となる。

プラズマ CVD では、10～1000Pa の低気圧下で、高周波放電を行いグロー状放電プラズマを生成させて、電子の平均運動エネルギーが 1eV 以上の高速電子を作りだし、試料ガスと衝突させて電離、励起あるいは解離させ、活性種をプラズマ中に形成し基板上に堆積させている。

必要とするプラズマ状態を制御して生成するには、試料ガス圧 p に依存する放電開始電圧、電力という電離エネルギーと試料ガス圧 p のプラズマ制御パラメーターが重要となる。一方、どのような特徴を持ったプラズマが生成されたかを知るためには、最低限生成されたプラズマの平均的な電子エネルギーを表す電子温度 T_e 、電子密度 N_e 、イオン電流 I_p などのプラズマパラメーターを測定することが重要である。

このため、今回は現有の試料ガスから He ガスを用い、高周波発振器の出力電圧・電力の制限も考慮しながら、試料ガスのガス圧 p と高周波発振器の出力電圧や電力のプラズマ制御パラメーターを幾通りかに変え、生成されたプラズマの電子温度 T_e 、電子密度 N_e 、イオン電流 I_p のプラズマパラメーターを測定して、プラズマ制御パラメーターとプラズマパラメーターの関係を実験的に調べた。この結果、電圧、電力の制御パラメーターと生成されたプラズマのイオン電流 I_p および電子密度 N_e には相関関係があったが、電子温度 T_e には相関関係が見られなかった。これらのことについて報告している。

2. 装置および実験方法

図 1 は実験装置の概略図である。プラズマ容器の放電管は外径 30mm ϕ 、長さ 80cm の石英ガラス管で、両端を O リングで真空止めできる金属アダプターに接合されている。2MHz 用および

13.5MHz 用ワークコイルは10回巻きで内径40mmφである。2MHz高周波発振器の最大出力電圧は6kVであるが、発振管7T62の格子電流や陽極電流に上限があり、生成されるプラズマ状態によって過電流となった場合には過電流継電器が作動し、出力電圧を遮断する機能が付いている。このため、過電流継電器が作動する放電状態にならないよう予め出力電圧を制限して実験を行なうようにしている。

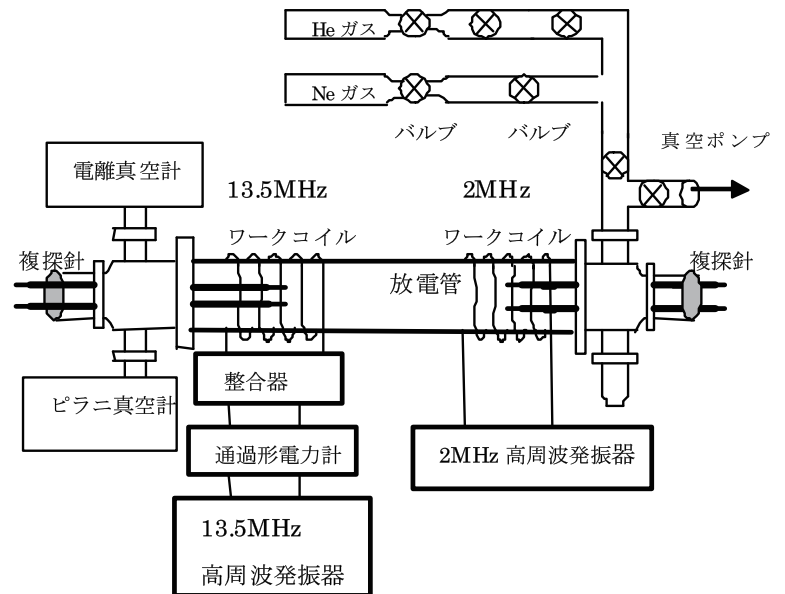


図1. 実験装置の概略図

13.5MHz 高周波発振器の最大出力電力は2.5kWである。図示のように、同軸ケーブルで発振器、通過形電力計および整合器

をつなぎ、整合器に13.5MHz用ワークコイルを接続している。通過形電力計は往路側電力 P_i (プラズマへの入射電力)と帰路側電力 P_R (プラズマ表面からの反射電力 P_r とプラズマへ注入された後吸収されずに透過して帰ってくる透過電力 P_t の和である)を同時に測定する電力計であり、往路、帰路電力の検波出力端子がついている。それゆえ、 P_i および P_R を通過形電力計で測定することからプラズマの吸収電力 $P_a (= P_i - P_R)$ を求めることができる。

また、生成されたプラズマの電子温度 T_e 、電子密度 N_e およびイオン電流 I_p などのプラズマパラメーターの診断には複探針法を用いる。複探針は、直径0.5mmφのタングステン線を先端の長さ2mmだけ露出させ、その他はパイレックスガラス細管で被覆絶縁した単探針を、探針間距離4mm離して束ねたものである。2MHzのプラズマ診断を行なう場合には、2MHz側の複探針を複探針回路に接続し、13.5MHzのプラズマ診断を行なう場合には、13.5MHz側の複探針を複探針回路に接続する。また、複探針回路の電圧-電流の飽和特性の測定はデジタルオシロスコープ(YOKOGAWA DL-1520)で行なう。

実験を行なう前には油拡散真空ポンプ(排気速度250 l/min)で放電管全体を 10^{-4} Pa程度に排気している。この到達真空度の確認は電離真空計(ULVAC GI-D6)で行なっている。また、試料ガスは、純度99.999%のHeガスをを用い、実験ごとに所定のガス圧に封入する。ガス圧の確認はピラニ真空計(ULVAC GP-2DA)で行なっている。プラズマ制御パラメーターの試料ガス圧 p は、事前に測定したパッシェン曲線の最低放電開始電圧が得られたガス圧を基準に、前後のガス圧から26.6Pa (0.2Torr)、53.2Pa (0.4Torr)、133Pa (1Torr)を選び出している。また、残るプラズマ制御パラメーターである電圧、電力については、2MHz高周波放電の場合1.5kV, 2kV, 2.5kV, 3kVおよび3.5kV

の5通りで出力の電圧調整を行い、13.5MHz 高周波放電の場合プラズマ吸収電力 Pa が 20W,40W,60W,80W および 100W の5通りで出力電力の調整を行ない、グロー状放電開始状態からアーク状放電に近い高周波放電プラズマを生成させ、それぞれの放電状態におけるプラズマパラメーターの測定を行なう。

3. 実験結果

3.1 2MHz 高周波放電の場合

図2は、試料ガスがHeガス、ガス圧 p が 26.6Pa(0.2Torr)の場合で、2MHz 高周波発振器の出力電圧を調整し、ワークコイルに印加する高周波電圧 V_L を 1.5kV から 3.5kV まで不連続に増加させた時の、2MHz 側複探針で測定した、プラズマ制御パラメーターであるワークコイル印加電圧 V_L とプラズマパラメーターである電子密度 Ne の関係の実験結果である。また、図3は、ガス圧が 53.2Pa(0.4Torr)の場合、図4は、ガス圧が 133Pa(1Torr)の場合の実験結果である。

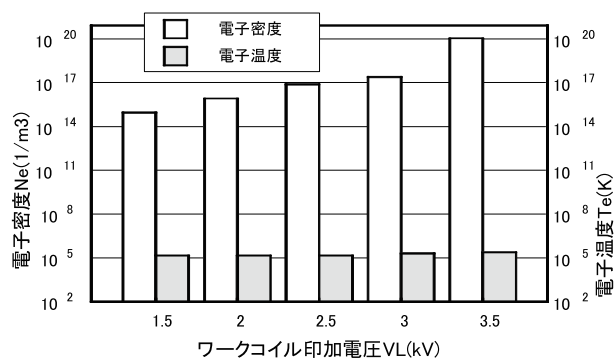


図2. ワークコイル印加電圧 V_L と電子密度 Ne の関係
(ガス圧 $p=26.6\text{Pa}$ の場合)

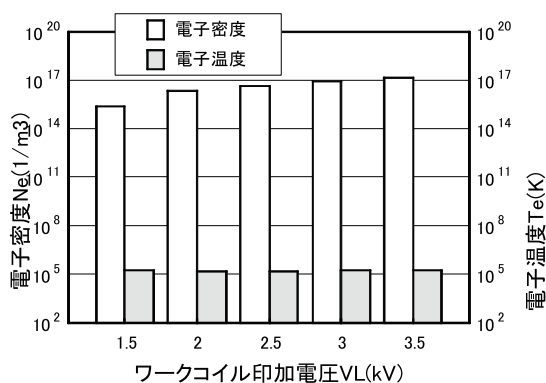


図3. ワークコイル印加電圧 V_L と
電子密度 Ne の関係
(ガス圧 $p=53.2\text{Pa}$ の場合)

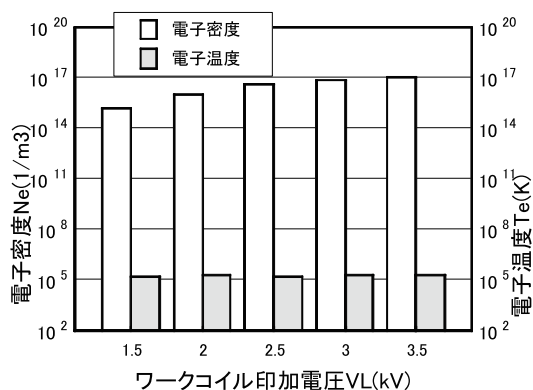


図4. ワークコイル印加電圧 V_L と
電子密度 Ne の関係
(ガス圧 $p=133\text{Pa}$ の場合)

いずれのガス圧の場合でも 2MHz ワークコイルへの印加電圧 V_L を増加するに従い、電子密度が増大していることが分る。また、ワークコイル印加電圧 V_L が 3.5kV の場合を除いて、同じワークコイル印加電圧の時の電子密度 N_e は、ガス圧 p が変化しても最大で約 2.6 倍、最小で約 1.13 倍の変化量に収まっている。一方、電子温度 T_e は $1.58 \times 10^5 \text{K}$ から $2.4 \times 10^5 \text{K}$ の範囲内で、ほとんど変化していない。

図 5 は、実験を行なった 3 種類のガス圧に関わらず、ワークコイル印加電圧 V_L ごとの電子密度の最小値 (N_{min}) と最大値 (N_{max}) を示したグラフである。印加電圧 V_L が 3.5kV の場合の最大値は、図 2 で示すガス圧が 26.6Pa の時に得られた。He ガスを用いた 2MHz 高周波放電のガス圧 p と放電開始電圧の関係を表わすパッシェン曲線では、放電開始電圧が最小になるガス圧は約 20Pa(0.15Torr)の時である。26.6Pa のガス圧は放電開始電圧が最小になる付近のガス圧であり、また 3.5kV という十分大きな電離エネルギーが供給されているため、グロー状放電からアーク状放電に放電状態が変化しているので、この結果、電子密度 N_e が 3kV 以下の場合の電子密度より約 1200 倍も大きな電子密度になった。

また、図 6、図 7 および図 8 は、ガス圧 p が 26.6Pa、53.2Pa および 133Pa 時のワークコイル印加電圧 V_L とイオン電流 I_p の関係を測定した結果である。イオン電流は 10^{-6}A から 10^{-2}A と広範囲に亘っていて、多様な放電状態であることが推察される。

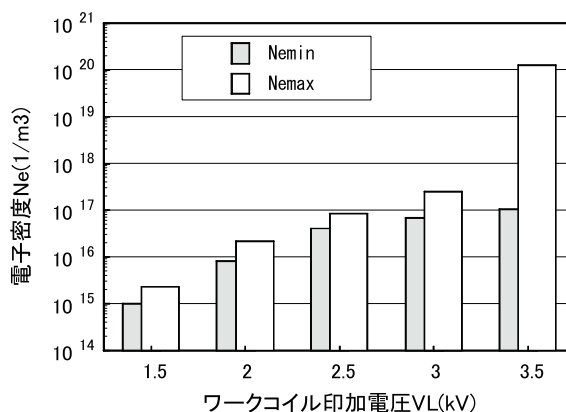


図 5. ワークコイル印加電圧ごとの最小電子密度と最大電子密度

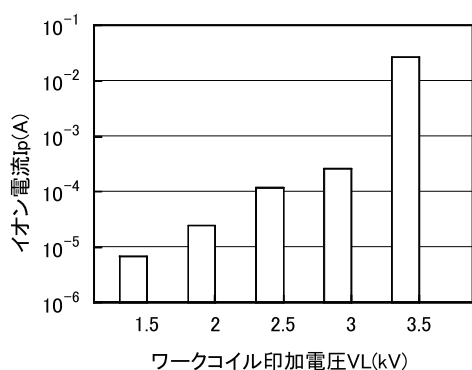


図 6. ワークコイル印加電圧 V_L とイオン電流 I_p の関係(ガス圧 $p=26.6\text{Pa}$ の場合)

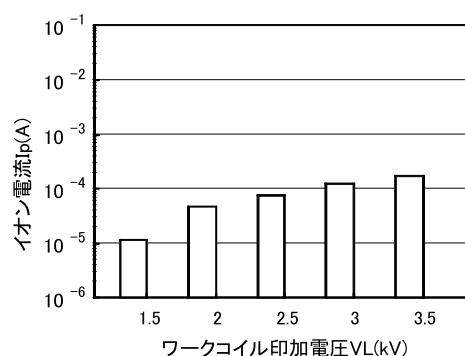


図 7. ワークコイル印加電圧 V_L とイオン電流 I_p の関係(ガス圧 $p=53.2\text{Pa}$ の場合)

ガス圧 p が 26.6Pa、ワークコイル印加圧 V_L が 3.5kV のときだけ、唯一イオン電流 I_P の値が 10^{-2}A となった。これは、図 2 の結果でも述べたが、放電状態が低電離状態のグロー状から高電離状態のアーク状放電に移行したためである。電離度については、5 章の考察において述べる。

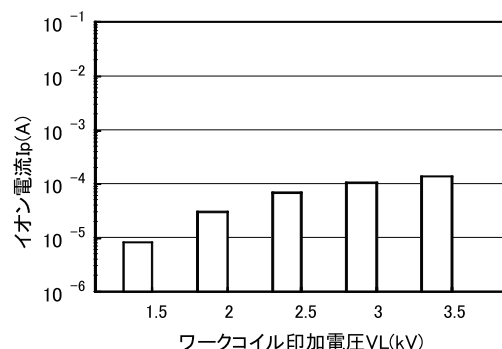


図 8. ワークコイル印加電圧 V_L とイオン電流 I_P の関係(ガス圧 $p=133\text{Pa}$ の場合)

3.2 13.5MHz 高周波放電の場合

図 9 は、試料ガスが He ガス、ガス圧 p が 26.6Pa(0.2Torr)の場合で、13.5MHz 高周波発振器の出力電力を調整し、プラズマの吸収電力 P_a を 20W から 100W まで不連続に増加させた時の、13.5MHz 側複探針で測定した、プラズマ制御パラメーターであるプラズマ吸収電力 P_a とプラズマパラメーターである電子密度 N_e の関係の実験結果である。また、図 10 は、ガス圧が 53.2Pa(0.4Torr)の場合、図 11 は、ガス圧が 133Pa(1Torr)の場合の実験結果である。

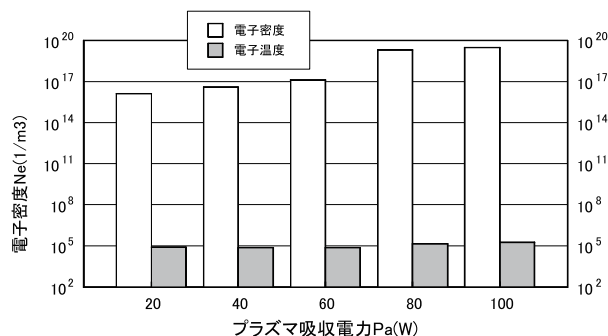


図 9. プラズマ吸収電力 P_a と電子密度 N_e の関係
(ガス圧 $p=26.6\text{Pa}$ の場合)

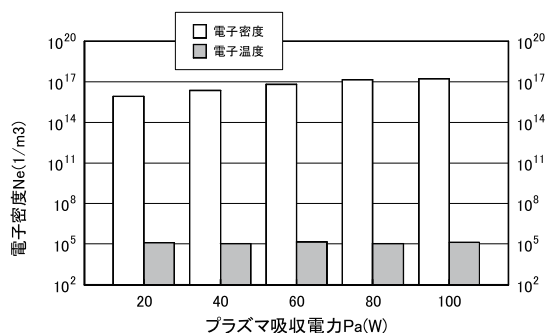


図 10. プラズマ吸収電力 P_a と電子密度 N_e の関係(ガス圧 $p=53.2\text{Pa}$ の場合)

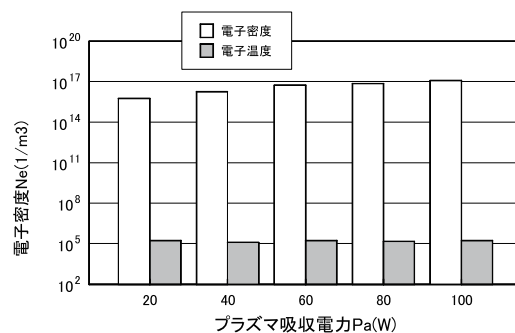


図 11. プラズマ吸収電力 P_a と電子密度 N_e の関係(ガス圧 $p=133\text{Pa}$ の場合)

いずれのガス圧の場合でも 13.5MHz のプラズマの吸収電力 P_a を 20W から増していくに従い、電子密度が増大している。ガス圧が 26.6Pa、プラズマの吸収電力 P_a が 80W および 100W の場合を除き、電子密度は最小値の $5.88 \times 10^{15} \text{ m}^{-3}$ から $1.32 \times 10^{17} \text{ m}^{-3}$ の範囲内で増大している。しかし、ガス圧が 26.6Pa、プラズマの吸収電力が 80W および 100W の場合には、アーク状放電になったため電子密度は $2.18 \times 10^{19} \text{ m}^{-3}$ から $3.22 \times 10^{19} \text{ m}^{-3}$ と大きく増えた。最大の電子密度は最小の電子密度の値 5.88×10^{15} よりも約 5500 倍も増大している。しかし、電子温度 T_e は $1.58 \times 10^5 \text{ K} \sim 2.4 \times 10^5 \text{ K}$ の範囲内で、余り変化していない。実験で使用した周波数が 2MHz、13.5MHz 高周波放電においては、電子温度 T_e はプラズマ制御パラメーターの高周波発振器の出力電圧・電力を増やしていても、ほぼ一定の値になり、2MHz、13.5MHz と同じ傾向をとることがわかった。

また、図 12、図 13 および図 14 は、ガス圧 p が 26.6Pa、53.2Pa および 133Pa 時のプラズマ吸収電力 P_a とイオン電流 I_p の関係を測定した結果である。ガス圧 p が 26.6Pa の時のプラズマの吸収電力が 80W および 100W の場合を除き、いずれのガス圧の場合でもイオン電流 I_p は $2.3 \times 10^{-5} \text{ A}$ から $1.6 \times 10^{-4} \text{ A}$ の範囲内で増えている。しかし、ガス圧が 26.6Pa、プラズマの吸収電力が 80W および 100W の場合には、放電状態がグロー状からアーク状放電に移行したため、イオン電流 I_p は $7.0 \times 10^{-3} \text{ A}$ から $1.0 \times 10^{-2} \text{ A}$ と大きく増えている。

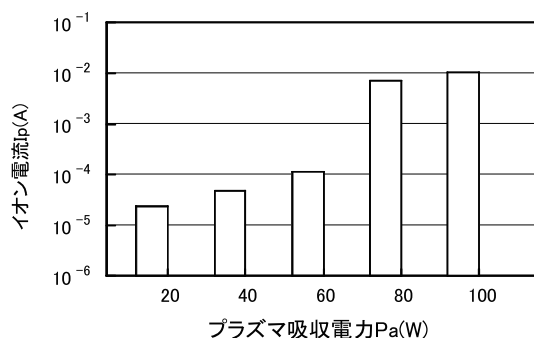


図 12. プラズマ吸収電力 P_a とイオン電流 I_p の関係
(ガス圧 $p=26.6\text{Pa}$ の場合)

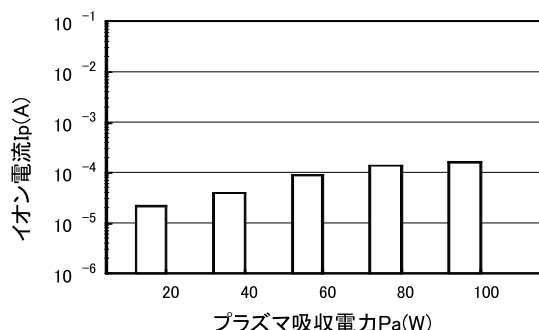


図 13. プラズマ吸収電力 P_a とイオン電流 I_p の関係 (ガス圧 $p=53.2\text{Pa}$ の場合)

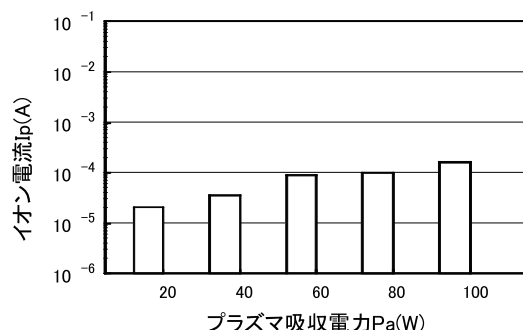


図 14. プラズマ吸収電力 P_a とイオン電流 I_p の関係 (ガス圧 $p=133\text{Pa}$ の場合)

今回の実験では、試料ガス圧 p が 26.6Pa から 133Pa と比較的变化の範囲を小さくしたため、ガス圧が 26.6Pa、プラズマの吸収電力 P_a が 80W と 100W の 2 例を除くと、ガス圧が異なっても各電力におけるイオン電流 I_p は同じような値をとることがわかった。

4. 考察

4.1 電子温度について

プラズマ状態の電離気体は、電子、正イオンおよび中性ガス分子の三成分混合気体である。一般に、三成分気体の間にはエネルギーの平衡条件は成立しないので、三成分のガス温度、電子温度 T_e 、イオン温度 T_i およびガス分子温度 T_g などは一致しない。熱エネルギーの平衡状態が成立しないのは、各成分のエネルギーの受け入れ方と吐き出し方が各成分の大きさや電氣的正・負などの特徴の相違に基づいている。

高周波電界下での気体中では、電子や正イオンは、高周波電界からエネルギーを受け取るが、中性ガス分子はそのようなことはできない。このため、電子や正イオンは高周波電界からエネルギーを受け入れやすい。一方、電子や正イオンは気体分子と衝突してそのエネルギーの一部を吐き出し失う。このとき、電子の大きさは正イオンの大きさよりも小さなため、エネルギーの吐き出し量は電子が小さく、正イオンは電子より多くなる。このため、電子のエネルギーは、高周波電界から受け入れるエネルギー量が多く、直径が小さいために衝突により吐き出す量が少なくなる。このため、全体としてエネルギーが保存される量が多くなるため、電子温度は正イオンおよび中性ガス分子の温度よりも高くなる。

その結果、定常状態では、高周波電界とガス圧で定まるある一定の平均エネルギーを持つようになる。それゆえ、実験では同じガス圧、同じプラズマを生成するための電圧・電力という電離エネルギーの条件下で実験を行なったので、電子温度 T_e は余り変化しなかったものと考えられる。

4.2 電離度について

高周波電界中を運動する電子による電流は、オームの法則の一般式から、

$$I = N_e e v S \quad (A) \quad (2)$$

で表わされる。ここで、 N_e は電子密度、 v は電子速度、 e は電子の電荷である。このため、生成されたプラズマのプラズマパラメーターである電子密度 N_e から電離度 α を求め、プラズマ制御パラメーターと電離度の関係を調べた。

気体の種類に関わらず、任意の温度 $T(K)$ 、ガス圧 $p(Torr)$ における気体の電離前の中性ガス分子密度 N_{00} は、ガス圧を p とすると、

$$N_{00} = 9.68 \times 10^{24} \left(\frac{p}{T} \right) \quad (m^{-3}) \quad (3)$$

で与えられる⁽⁵⁾。それゆえ、電離度 α は、

$$\alpha = \frac{N_e}{N_{00}} \times 100 \quad (\%) \quad (4)$$

で表わされる。

3章の実験結果における 2MHz および 13.5MHz のプラズマ制御パラメーターとプラズマパラメーターの関係での電子密度 N_e を用いて、プラズマ制御パラメーターと電離度の関係を調べた。

図 15 は 2MHz 高周波放電の場合、図 16 は 13.5MHz 高周波放電の場合である。

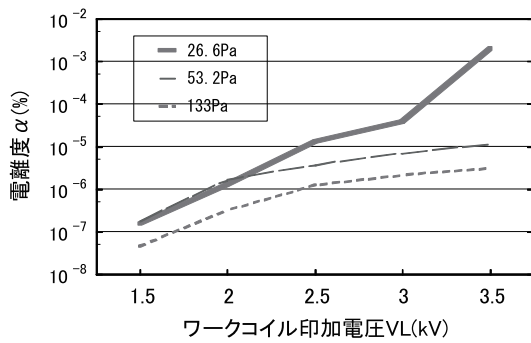


図 15. 2MHz 高周波放電の電離度

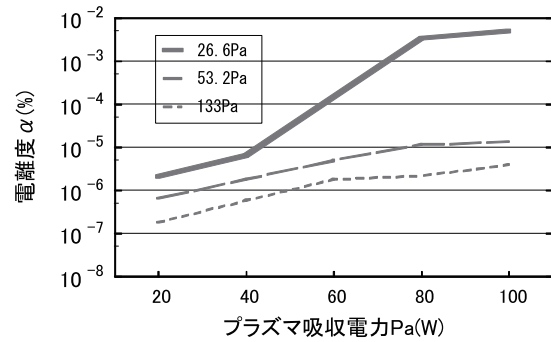


図 16. 13.5MHz 高周波放電の電離度

2MHz 高周波放電のガス圧 p と放電開始電圧の関係を表わすパッシェン曲線では、放電開始電圧が最小になるガス圧は約 20Pa(0.15Torr)の時である。26.6Pa のガス圧は放電開始電圧が最小になる付近のガス圧である。それゆえ、3kV、3.5kV という十分大きな電離エネルギーの電圧をワークコイルに印加しているので、放電状態はグロー状からアーク状に移行するため、3kV を境に電離度が急に大きくなっている。また、13.5MHz の場合にも 26.6Pa の場合、プラズマの吸収電力 Pa が 60W より大きくなると、電離度は他のガス圧の場合よりも増え方が急激に大きくなっている。

電離度は、放電の発光状態が弱いグロー状放電状態の場合には $10^{-7}\%$ から $10^{-5}\%$ 程度であるが、発光強度の強いアーク状放電になると電離度は $10^{-3}\%$ 以上と大きくなっている。

5. 結言

プラズマ CVD では、10～1000Pa の低気圧下で高周波放電を行い、グロー状放電プラズマを生成させている。必要とするプラズマ状態を制御して生成するには、試料ガス圧 p に依存する放電開始電圧、電力という電離エネルギーと試料ガス圧 p のプラズマ制御パラメーターが重要となる。また、生成されたプラズマがどのような特徴を持っているかを知るため、最低限生成されたプラズマの平均的な電子エネルギーを表す電子温度 T_e 、電子密度 N_e 、イオン電流 I_p などのプラズマパラメーターを測定することが重要である。このため、今回は試料ガスとして He ガスを用

い、ガス圧 p と高周波発振器の出力電圧や電力のプラズマ制御パラメーターと生成されたプラズマの電子温度 T_e 、電子密度 N_e などのプラズマパラメーターを測定して、プラズマ制御パラメーターとプラズマパラメーターの関係を実験的に調べた。

この結果、電圧、電力の制御パラメーターと生成されたプラズマのイオン電流 I_p および電子密度 N_e には相関関係が見られ、電子密度 N_e は、2MHz 高周波放電の場合には概ね 10^{14} m^{-3} から 10^{17} m^{-3} 、13.5MHz 高周波放電の場合には 10^{15} m^{-3} から 10^{17} m^{-3} の値になることがわかった。しかし、電子温度 T_e には相関関係は見られず、2MHz および 13.5MHz 高周波放電に関わらず、概ね 10eV($\approx 10^5 \text{ K}$)であることがわかった。

参 考 文 献

- (1) 増田 淳 : 次世代シリコン太陽電池製造のためのプラズマ技術,
プラズマ・核融合学会誌, Vol.85, N0.12, (2009), p.809
- (2) 松野 繁 : 表面微小凹凸構造による高効率多結晶シリコン太陽電池,
プラズマ・核融合学会誌, Vol.85, N0.12, (2009), p.829
- (3) 小松 雄爾: 太陽電池パネルの世界的な需要動向と将来展望,
プラズマ・核融合学会誌, Vol.85, N0.12, (2009), p.811
- (4) 堤井 信力: プラズマ基礎工学(内田老鶴圃、東京都、1986)1 版, p.39
- (5) 石黒美種、牛田富之 : 電子工学例題演習(コロナ社、1964)p.42

(平成 22 年 3 月 31 日受理)