

# プラズマのコンダクタンスが負になる 臨界条件式からの衝突周波数 $\nu$ の算出

長 濱 治 男

## Calculation of collision Frequency $\nu$ from a Critical Conditional Equation occurring the Negative Conductance in R. F. Discharge Plasma

Haruo NAGAHAMA

Transition mechanism from glow-like to arc-like R.F. discharge have been studied. In this research a critical conditional equation that the conductance of high frequency discharge plasma becomes negative have introduced.

In the present report the collision frequency  $\nu$  are calculated from a critical conditional equation and compared the calculated results with the experimental results.

### 1. まえがき

周波数が13.5 MHzや27 MHzの無線周波数(Radio Frequency)帯の高周波でプラズマを生成する高周波無電極放電は、電極から放出される不純物の影響が除去されるため、近年アモルファス太陽電池やDRAMなど超LSI製造のエレクトロニクス分野および新素材開発のためのプラズマプロセスなどに応用されている。プラズマが注目されている理由は、高い温度でしか起こすことのできない化学反応を、プラズマ中では低い温度で起こすことができる非平衡性を容易に実現できるためである。筆者は、従来から誘導結合型高周波放電で生成されるグロー状放電、アーク状放電の放電特性やグロー状からアーク状放電への移行機構および高電離プラズマを生成するための2種類の高周波電界重畳放電の研究を行ってきた<sup>1)~3)</sup>。これらの研究の結果、(1)高周波に対するプラズマの等価コンダクタンス $\sigma'$ が負になるため、不安定性が生じ、プラズマ中で高周波電界の振幅が増幅され、この強い電界で電離が促進されるためグロー状からアーク状放電に移行すること、(2)アーク状放電開始の電圧が最小になるガス圧の点で、印加高周波電圧の角周波数 $\omega$ と電子と中性ガス分子の衝突周波数 $\nu$ が等しくなることを見出してきた。

今回は、コンダクタンス $\sigma'$ が負になる臨界条件式を基に、電子とガス分子との衝

突周波数 $\nu$ についての方程式を解き、 $\nu$ の計算値を求め、 $\nu$ の実験値と比較検討した。この結果、大体一致することが分かったので報告する。

## 2. 実験装置

図1は実験に用いた放電管および1 MHz、13.5 MHzの高周波発振器の略図である。放電管は内径が30 mm $\phi$ 、長さ80 cmの石英ガラス管で、その両端は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。1 MHzコイルは10巻、13.5 MHzコイルは8巻である。単探針はイオン電流の測定に、複探針は電子温度、電子密度の測定に用いる。探針の材料はタングステン線で、長さ2 mm、直径0.5 mm $\phi$ である。なお、これらの探針は放電管の管軸から管壁まで半径方向に可変できる。

実験を行う前には、油拡散真空ポンプ

で放電管全体を $10^{-5}$  Torr以下の真空度に排気する。また、試料ガスは、純度99.999%の $H_2$ ガスを用いている。

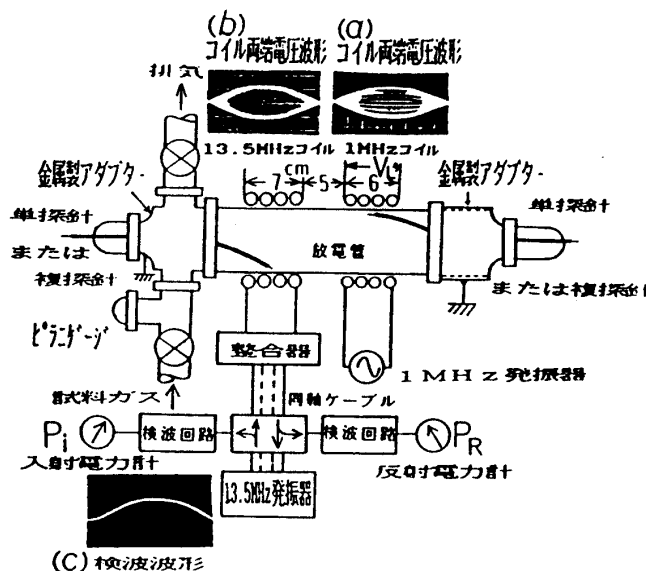


図. 1 実験装置

## 3. 衝突周波数 $\nu$ の算出

### (3.1) $\sigma' < 0$ になる臨界条件式から $\nu$ の導出

高周波に対するプラズマの等価コンダクタンス $\sigma'$ が負になる臨界条件式は、

$$\frac{v_{0r}}{r} = \frac{\omega^2 + \nu^2}{2\nu(1+z)}, \quad z = \left(1 + \frac{\mu_0 r^2 n_{0r} e^2}{2m}\right)^{1/2} \quad (1)$$

で与えられている<sup>2)</sup>。ただし、 $v_{0r}$ は半径方向の拡散速度、 $z$ は表皮効果の程度を表わす係数である。

(1) 式を $\nu$ についての式に書き換えると、

$$\nu^2 - 2(1+z)(v_{0r}/r)\nu + \omega^2 = 0 \quad (2)$$

となる。しかし、 $z$ および $v_{0r}/r$ の値が未知であるため、このままでは(2)式は解けない。このため、グロー状放電からアーク状放電へ移行する直前のグロー状放電状態において、半径方向の電子密度分布を測定し、表皮効果の程度や拡散速度を調べることにする。

### 〈3.2〉 $z$ , $\nu_{or}$ の算出

図2は、アーク状放電直前のグロー状放電状態で、ガス圧を3種類変えて測定した電子密度の半径方向分布図である。図1の各ガス圧における $r=0$ から $r=15\text{mm}$ の電子密度の値 $n_{or}$ を(1)式の $z$ の式に代入して、各位置における $z$ の値を計算すると、 $z=1.017\sim 1.0006$ となり、 $z$ の値は近似的に $z \approx 1$ となることが分かる。

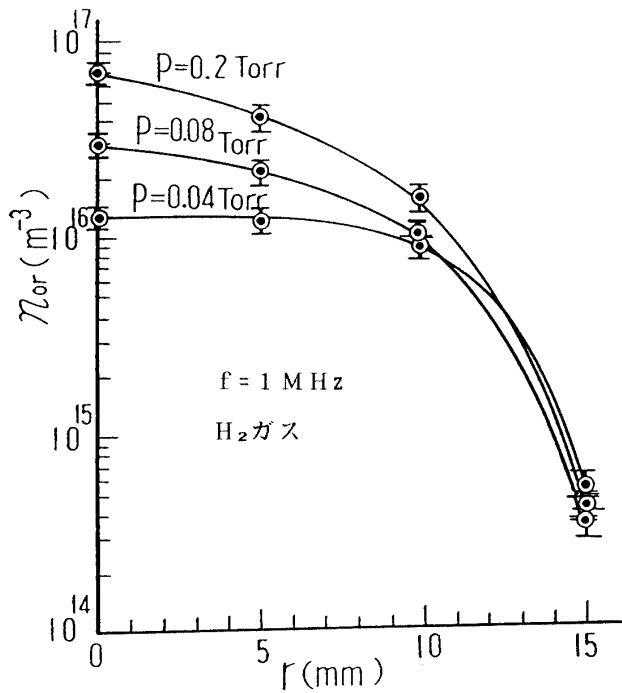


図2. アーク状放電直前の電子密度の半径方向分布

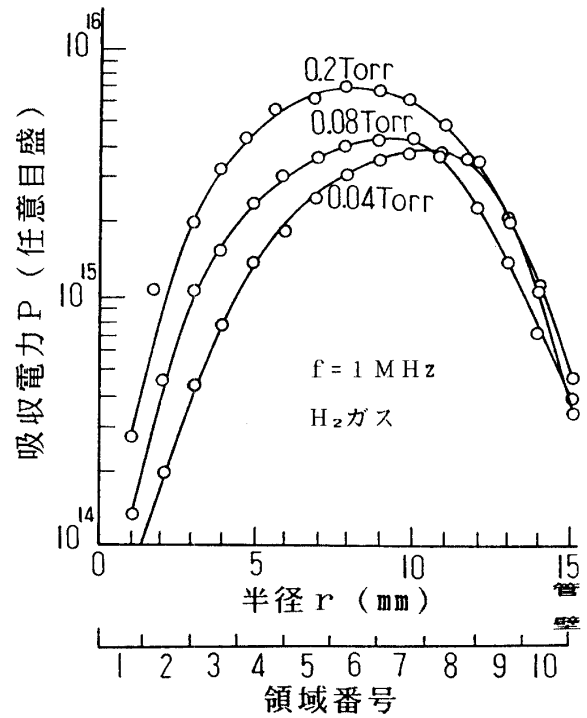


図3. プラズマの半径方向吸収電力

高周波電界 $E_{1\theta}$ を印加した時、単位体積当たりのプラズマの吸収電力 $P$ は

$$P = \frac{n_{or} e^2}{m} \cdot \frac{\nu}{\omega^2 + \nu^2} \cdot E_{1\theta}^2 \doteq K \cdot \left(\frac{r}{a}\right)^2 n_{or}$$

ただし  $E_{1\theta} = E_a \left(\frac{r}{a}\right)^{\frac{1}{2}}$

$$K = \frac{e^2}{m} \cdot \frac{\nu}{\omega^2 + \nu^2} \cdot E_a^2$$

(3)

で与えられる。ただし、 $E_{1\theta}$ は高周波電界の実効値である。衝突周波数 $\nu$ は、ガス圧 $p$ の値が決まれば定まる。このため、吸収電力 $P$ の計算に際して $\nu$ は定数としている。また、表皮効果を考慮に入れて高周波電界 $E_{1\theta}$ の半径方向分布を表わす式で、 $z$ の値は1としている。また、 $a$ は放電管の半径で、 $a=15\text{mm}$ であり、 $E_a$ は放電管壁上の高周波電界である。図1における各ガス圧の $r=0$ (放電管軸部)から $r=15\text{mm}$ (管壁部)までの1mmごとの電子密度の値 $n_{or}$ を(3)式に代入し、プラズマの半径方向の吸収電力 $P$ の値を計算した結果が図3である。

吸収電力が最大になる位置は、 $p=0.2$  Torrの場合が6領域( $r=8$ mm)、 $p=0.08$  Torrの場合が7領域( $r=9.5$ mm)、 $p=0.04$  Torrの場合が8領域( $r=11$ mm)であり、必ずしも電界強度が一番強い放電管壁部で、吸収電力が最大にならないことが分かる。

次に、電子はボルツマン分布をとると仮定すると、

$$n_{or} = n_{00} \exp \left( \frac{e \phi_r}{k T_e} \right), \quad \phi_r < 0 \quad (4)$$

で、任意半径  $r$  での電子密度  $n_{or}$  が与えられる。ただし、 $n_{00}$  は放電管軸上の電子密度である。図2に示した電子密度分布を基に、(4)式からプラズマ中のポテンシャル  $\phi_r$  を計算した結果が図4である。

プリシースのポテンシャルを  $\phi_T$  とすると、

イオンの運動エネルギーの式

$$\frac{1}{2} M u_{0i}^2 = e |\phi_T| \quad (5)$$

とボームのシース基準の式<sup>4)</sup>

$$u_{0i} \cong (k T_e / M)^{1/2} \quad (6)$$

から、 $\phi_T$  は

$$|\phi_T| = \frac{1}{2} \cdot \frac{k T_e}{e} \quad (7)$$

となる。電子温度  $T_e$  に、すでに実験結果

として発表した<sup>2)</sup>  $T_e = 1 \times 10^5$  K の値を

代入すると、 $|\phi_T| = 4.31$  (V) が

得られる。また、ボームのシース基準を基に、シース中の電子速度  $V_{or}$  は

$$\left. \begin{aligned} v_{or} = \frac{n_{00}}{n_{or}} u_{0i} = \left( \frac{k T_e}{M} \right)^{1/2} \exp \left\{ \frac{e}{k T_e} (\phi_T - \phi_r) \right\} \\ \text{ただし} \quad \phi_T < 0, \phi_r < 0 \end{aligned} \right\} \quad (8)$$

で与えられている<sup>2)</sup>。プリシースのポテンシャルは  $\phi_T = -4.31$  V であるから、図4を用いて各ガス圧および各位置でのポテンシャル  $\phi_r$  の値を求め、この値を(8)式に代入して  $V_{or}$  のを計算した結果が図5である。領域番号が大きくなる、つまり放電管壁に近づくに従い、電子速度は大きくなることが分かる。以上で、各ガス圧における任意の位置での電子速度  $V_{or}$  の値が分かった。また、プラズマのコンダクタンス  $\sigma'$  が負になるのは、放電管壁ではなく、吸収電力が最大になる領域である<sup>3)</sup>ことが知られている。それゆえ、(2)式の  $r$  として、各ガスにおいて吸収電力が最大になる位置の値を用いることにする。

### (3.3) $\nu$ の計算

吸収電力が最大になる位置の電子密度の値  $n_{or}$  を(1)式の表皮効果の程度  $z$  を与える式に代入することから、 $z$  の値がわかる。また、吸収電力最大位置  $r$  およびこの位置での電子速度  $V_{or}$  の値が分かったので、これらの諸量を(2)式に代入することから、(2)式を解くことが可能となった。(2)式はNewton法に基づき、パソコンにて計算処理を行う。もし、2実根が得られればよいが、もし、複素解

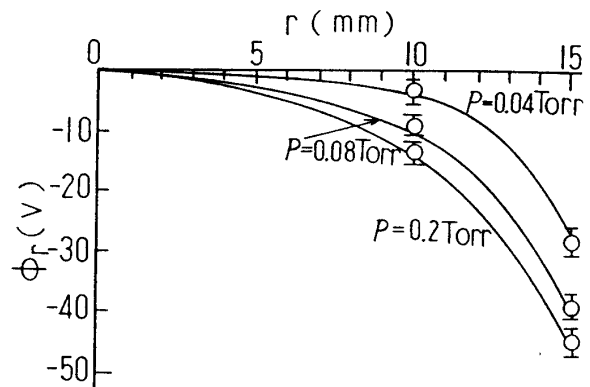


図4. ポテンシャルの半径方向分布

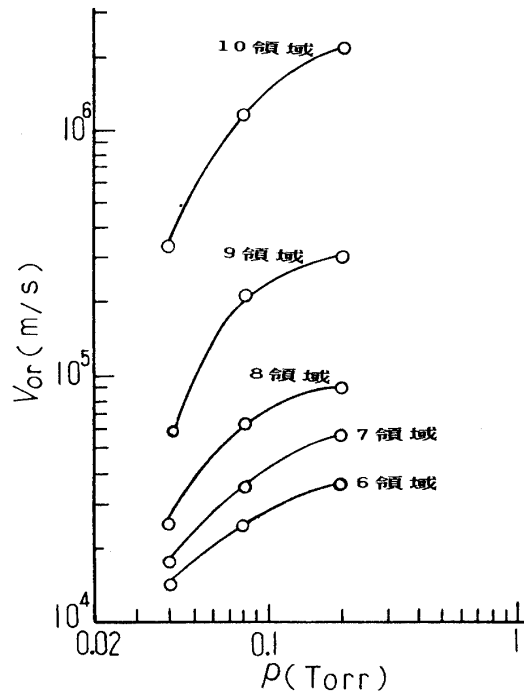


表1. 衝突周波数 $\nu$ の計算結果表示例 ( $p=0.2$  Torr)

計算結果 $P=0.2$ (Torr) の場合	
<条件>	
周波数 (Hz) = $1 \times 10^6$	
吸収電力最大位置 $r$ (mm) = 8	
電子密度 $NOR(m^{-3}) = 2.35 \times 10^{16}$	
$VOR/r(1/s) = 4.542 \times 10^6$	
<2次方程式 $A \cdot \nu^2 + B \cdot \nu + C = 0$ の解>	
$A=1 \quad B=-1.8168 \times 10^7 \quad C=3.94784 \times 10^{13}$	
<衝突周波数 $\nu$ で表示の場合>	
$\nu 1 = 2.52346 \times 10^6$	
$\nu 2 = 1.56445 \times 10^7$	
< $\nu = \alpha(\omega) \cdot P$ で表示の場合>	
$\nu 1 = 1.26173 \times 10^7 \cdot P$	
$\nu 2 = 7.82227 \times 10^7 \cdot P$	

図5. シース中の電子速度 $V_{or}$

の場合には、吸収電力最大位置からさらに管壁側へ1mmずつずらしてゆき、その位置での $z$ および $V_{or}/r$ の値を入力し、実根が得られるまで計算を繰り返す。表1は、ガス圧 $p=0.2$  Torrの場合の、入力諸量および衝突周波数 $\nu$ の2実根 $\nu 1$ 、 $\nu 2$ の計算結果を示している。また、表2は全てのガス圧での計算結果である。

表2. 衝突周波数 $\nu$ の計算結果

ガス圧 (Torr)	0.2	0.08	0.04
衝突周波数 $\nu$ (sec <sup>-1</sup> )			
$\nu 1$	$1.56 \times 10^7$	$3.56 \times 10^6$	$3.13 \times 10^6$
$\nu 2$	$2.52 \times 10^6$	$11.1 \times 10^6$	$12.6 \times 10^6$

ガス圧が0.2 Torrおよび0.08 Torrでは、吸収電力最大位置で2実根が得られた。しかし、0.04 Torrでは、吸収電力最大位置から2mmずれた $r=13$  mmの位置でようやく2実根が得られた。

#### 4. 衝突周波数 $\nu$ の検討

図6は、アーク状放電開始電圧 $V_c$ とガス圧 $p$ の関係である。ただし、縦軸は $V_c$ の最小値 $V_{cs}$ で規格化してある。既に報告した<sup>3)</sup>ように、 $V_{cs}$ のガス圧点(ミニマムポイント)で印加高周波電界の角周波

数 $\omega$ と衝突周波数 $\nu$ との間に、 $\omega = \nu$ の関係が成立する。また、衝突周波数 $\nu$ はガス圧 $p$ の関数であるので、

$$\nu = \alpha \cdot p \quad (9)$$

として表わすことができる。ミニмумポイントで、 $\omega = \nu = 2\pi \times 1 \times 10^6$ の関係があるので、ミニмумポイントのガス圧である $p = 0.1 \text{ Torr}$ を(9)式に代入すると、 $\alpha = 6.27 \times 10^7$ の値を得る。それゆえ、衝突周波数 $\nu$ は

$$\nu = 6.28 \times 10^7 \cdot p \quad (10)$$

で表わされる。(10)式の $p$ に0.2, 0.08, 0.04 Torrの各ガス圧値を代入して衝突周波数 $\nu$ の値を計算した結果が表3の実験値である。

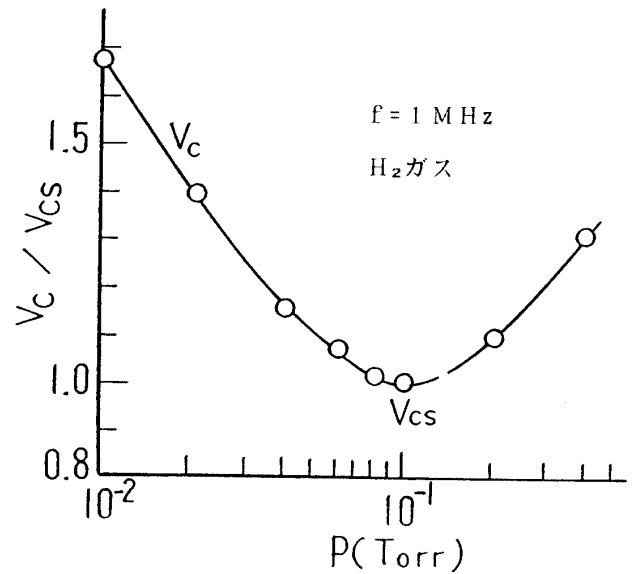


図6. アーク状放電開始電圧 $V_c$ とガス圧の関係

表3. 衝突周波数 $\nu$ の計算値と実験値

ガス圧 (Torr)	0.2	0.08	0.04
衝突周波数 $\nu$ (sec <sup>-1</sup> )			
$\nu 1$	$1.56 \times 10^7$	$3.56 \times 10^6$	$3.13 \times 10^6$
$\nu 2$	$2.52 \times 10^6$	$11.1 \times 10^6$	$12.6 \times 10^6$
平均値	$9.06 \times 10^6$	$7.33 \times 10^6$	$7.86 \times 10^6$
実験値	$1.26 \times 10^7$	$5.02 \times 10^6$	$2.51 \times 10^6$
$\nu 1$ と実験値との誤差率(%)	24.2	-29.1	24.7

表3の平均値は、 $\nu$ の計算値を実験値と比較検討するため、2実根の値の平均値を求めたものである。また、衝突周波数 $\nu$ はガス圧 $p$ に比例するので、ガス圧が高くなるほど、 $\nu$ の値は大きくなる。計算値 $\nu 1$ は、そのような関係を満足している。それゆえ、 $\nu$ の計算値として $\nu 1$ を選び、実験値との誤差率を求めた。この結果、誤差率は約24%から29%の範囲になった。また、平均値と実験値との誤差率を求めると、28%から213%と誤差率が大きくなった。誤差率213%は、ガス圧が0.04 Torrの場合

合である。このガス圧での $\nu$ の計算値は、プラズマの吸収電力最大位置での値ではなく、さらに2mm管壁側に寄った $r=13\text{mm}$ 位置における値である。ガス圧が0.2 Torrおよび0.08 Torrの場合の $\nu$ は、吸収電力最大位置での値であり、この場合の誤差率は28%、46%と小さな値となっている。それゆえ、0.04 Torrの場合、 $\nu$ の誤差率が213%と極めて大きくなった原因は、吸収電力最大位置では $\nu$ の複素解しか得られなかったため、実根を得る目的で吸収電力最大位置からさらに2mm管壁側にずれた位置での $z$ および $V_{or}/r$ の値を用いて、(2)式を解いたためであると思われる。

## 5. 結 言

誘導結合型高周波無電極放電のグロー状放電からアーク状放電への移行機構を解明するため、高周波に対するプラズマの等価コンダクタンスの負性化の見地から研究を行ってきた。この研究で得られたプラズマのコンダクタンスが負になる臨界条件式を基に、電子とガス分子との衝突周波数 $\nu$ を計算で求め、実験値と比較検討した。特に2実根の計算値の内、ガス圧 $p$ と衝突周波数 $\nu$ の関係を満足する解の $\nu_1$ を正解値と考え、この $\nu_1$ と実験値との誤差率を求めた。この結果、約24%から29%の範囲の誤差率となり、計算値と実験値はよく一致することが分かった。それゆえ、プラズマのコンダクタンスが負になる臨界条件式は正しいことが改めて確認された。

## 参 考 文 献

- 1) 長濱、福村、高元：電気学会論文誌 **A103** (1982), 265
- 2) 長濱、福村、高元：電気学会論文誌 **A105** (1985), 381
- 3) 長濱、福村、高元：電気学会論文誌 **A108** (1988), 51
- 4) F.F.Chen, 内田訳：プラズマ物理入門、丸善(1977), 215
- 5) 長濱、福村、高元：核融合研究 **48**, 1 (1982), 41

(平成3年12月14日受理)