

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2)

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 2)

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 , ionization voltage V_s and the ionization electric power P_a is important. Also, to investigate basic plasma parameter of the electron temperature T_e of the created plasma and electron densities N_e is required.

In this paper, changing sample gas into Ne gas from He gas and examining relation between the plasma control parameter and plasma parameter experimentally are 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 V_s (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る⁽⁴⁾。容量結合型高周波放電⁽⁵⁾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⁽⁵⁾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、研究紀要第 40 号では試料ガスとして He ガスを用いた場合の実験を行ない、この結果を報告した。今回は試料ガスとして Ne ガスを用い、所有の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、先に報告した He ガスでの実験結果と同様、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。また、同じプラズマ制御パラメータの条件下では Ne ガスの場合の方が He ガスよりも電子密度 N_e 、イオン電流 I_p のプラズマパラメータが大きくなる結果が得られた。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 40mm ϕ 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状態になった時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。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 0.5mm ϕ 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 Ne ガスを用い、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 1.3kV, 1.5kV, 2kV, 2.5kV および 3kV 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 P_a 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。

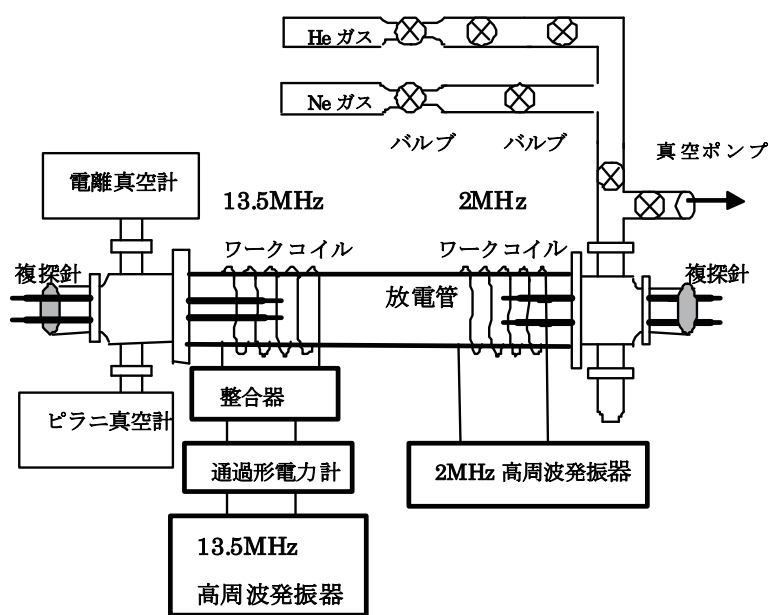


図 1. 実験装置の概略図

3. 実験結果

3.1 2MHz 高周波放電の場合

図2は、試料ガスがNe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1.3kVから3kV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 N_e 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。

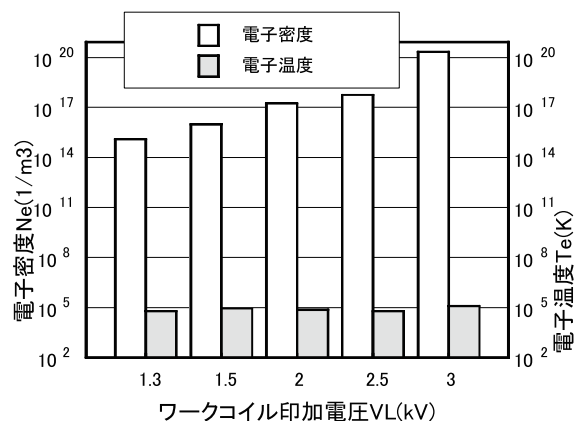


図2. ワークコイル印加電圧 V_L と電子密度 N_e の関係
(ガス圧 $p=26.6$ Paの場合)

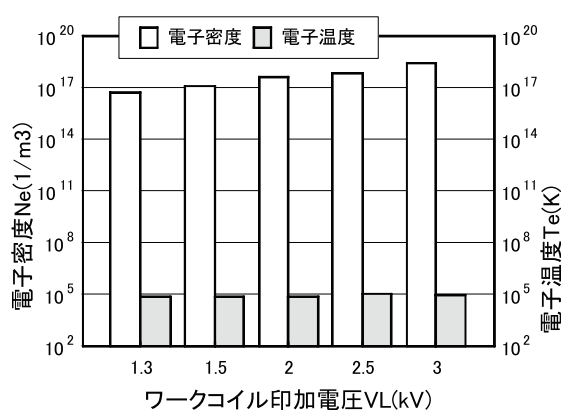


図3. ワークコイル印加電圧 V_L と
電子密度 N_e の関係
(ガス圧 $p=53.2$ Paの場合)

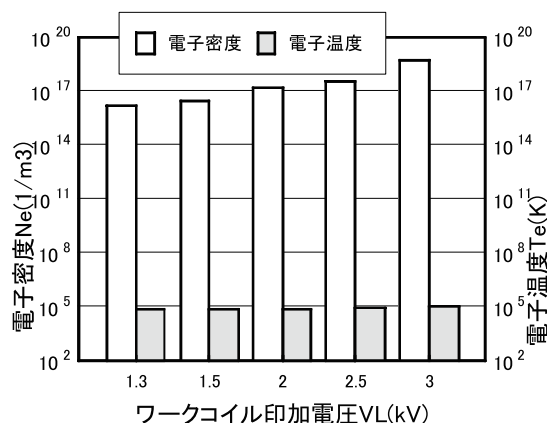


図4. ワークコイル印加電圧 V_L と
電子密度 N_e の関係
(ガス圧 $p=133$ Paの場合)

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、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が同じ値でガス圧 p が異なる場合の電子密度 N_e の変化量は、最大で約36倍、最小で約2.3倍の変化量

になっている。一方、電子温度 T_e は $7.2 \times 10^4 \text{K}$ から $1.26 \times 10^5 \text{K}$ の範囲内で変化しているだけで、この変化量は複探針法に基づく電子温度導出の解析誤差の範囲内に収まっている。

また、図 5、図 6、図 7 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^{-3}A と広範囲に亘っていて、低電離状態のグロー状放電からアーク状放電に近いグロー状放電状態にまでなっていたことがわかる。

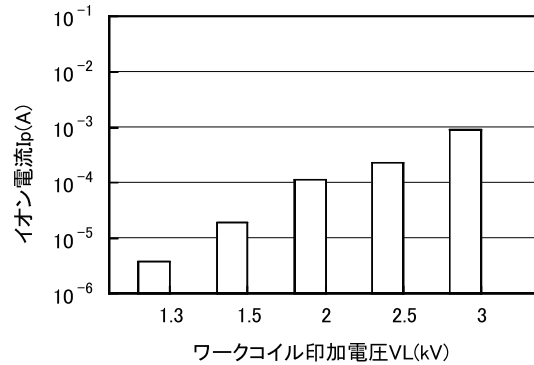


図 5. ワークコイル印加電圧 V_L とイオン電流 I_p の関係(ガス圧 $p = 26.6 \text{Pa}$ の場合)

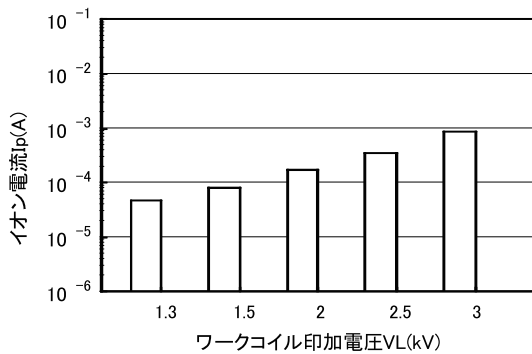


図 6. ワークコイル印加電圧 V_L とイオン電流 I_p の関係(ガス圧 $p = 53.2 \text{Pa}$ の場合)

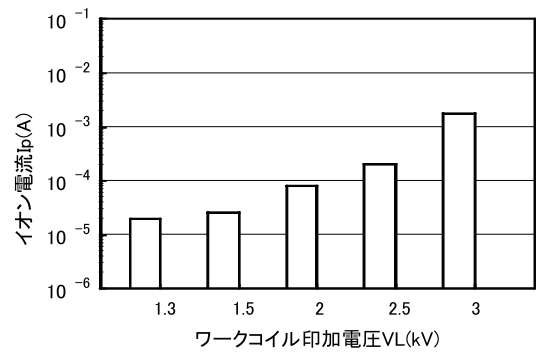


図 7. ワークコイル印加電圧 V_L とイオン電流 I_p の関係(ガス圧 $p = 133 \text{Pa}$ の場合)

3.2 13.5MHz 高周波放電の場合

図 8 は、試料ガスが Ne 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のプラズマ吸収電力 P_a とプラズマパラメーターの電子密度 N_e と電子温度 T_e の関係を調べた実験結果である。また、図 9 は、ガス圧

p が 53.2Pa(0.4Torr)の場合、図 10 は、ガス圧 p が 133Pa(1Torr)の場合の実験結果である。

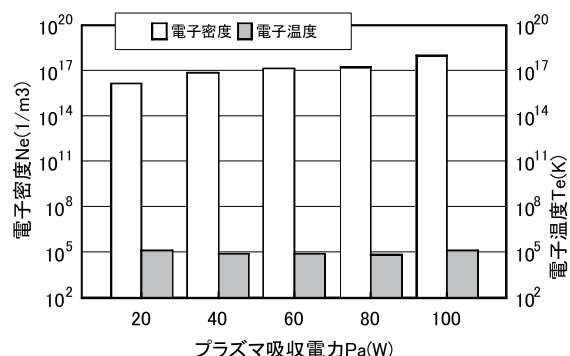


図 8. プラズマ吸収電力 P_a と電子密度 N_e の関係
(ガス圧 $p=26.6\text{Pa}$ の場合)

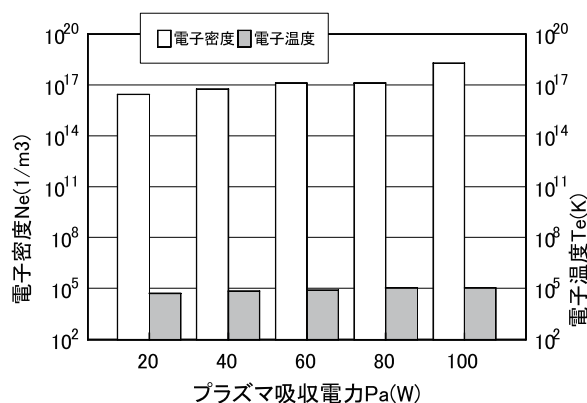


図 9. プラズマ吸収電力 P_a と電子密度 N_e
の関係(ガス圧 $p=53.2\text{Pa}$ の場合)

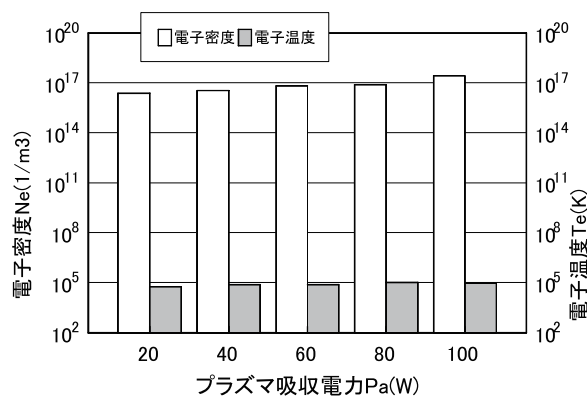


図 10. プラズマ吸収電力 P_a と電子密度 N_e
の関係(ガス圧 $p=133\text{Pa}$ の場合)

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。電子密度は最小値の $1.55 \times 10^{16} \text{m}^{-3}$ から $2.04 \times 10^{18} \text{m}^{-3}$ の範囲内で増大している。最大の電子密度は最小の電子密度の値 $1.55 \times 10^{16} \text{m}^{-3}$ よりも約 132 倍増大している。しかし、電子温度 T_e は $5.12 \times 10^5 \text{K} \sim 1.1 \times 10^6 \text{K}$ の範囲内で変化しているが、この変化量は複探針法に基づく電子温度導出の解析誤差の範囲内に収まっている。

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や電力を増やしても、複探針法に基づく電子温度導出の解析誤差の範囲内に収まっていることがわかった。

また、図 11、図 12 および図 13 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。

今回の Ne ガスでの実験では、イオン電流 I_p は $3.3 \times 10^{-5} \text{ A}$ から $5.2 \times 10^{-4} \text{ A}$ の範囲内で増えている。He ガスのように急激な増加が見られなかった原因として、プラズマ制御パラメーターであるガス圧の変化の範囲とプラズマの吸収電力の変化の範囲では、放電状態がグロー状放電だけで、アーク状放電に移行しなかったことが考えられる。

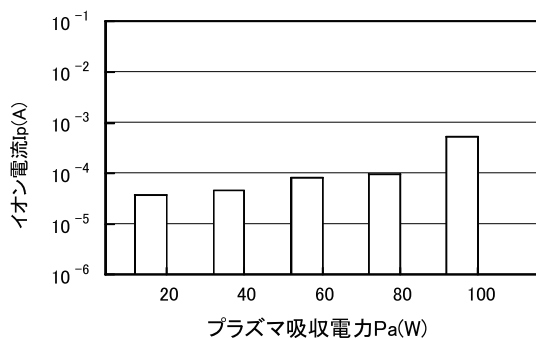


図 11. プラズマ吸収電力 P_a とイオン電流 I_p の関係
(ガス圧 $p = 26.6 \text{ Pa}$ の場合)

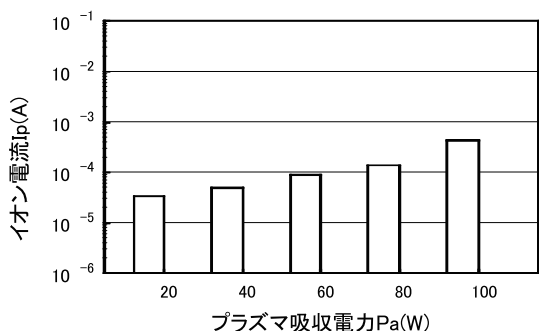


図 12. プラズマ吸収電力 P_a とイオン電流 I_p の関係 (ガス圧 $p = 53.2 \text{ Pa}$ の場合)

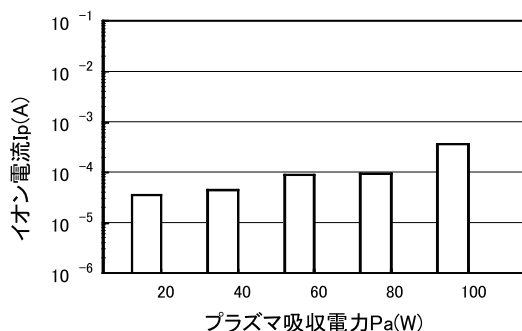


図 13. プラズマ吸収電力 P_a とイオン電流 I_p の関係 (ガス圧 $p = 133 \text{ Pa}$ の場合)

4. 考察

4.1 電子温度が余り変化しない理由について

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 などとは一致しない。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

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いため、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、試料ガスの種類に関わらず、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 試料ガスの種類による電子密度の相違について

研究紀要第40号では、試料ガスとして He ガスを用いて実験を行なった場合について報告した。今回は試料ガスとして Ne ガスを用い、He ガスの場合と同じプラズマ制御パラメータの条件下で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を測定した。ここでは、紙面の制約もあるので、プラズマ制御パラメータの試料ガス圧が 133Pa の場合に限定して比較を行なう。

図 14 は、2MHz 高周波発振器の出力電圧を調整し、ワークコイル印加電圧 V_L を 1.3kV から 3.5kV まで変化させた時の電子密度 N_e を He ガスと Ne ガスで比較したグラフである。

図中において、1.3kV では He ガスを表わす灰色棒グラフがないのは、1.3kV の印加電圧では He ガスは放電せず、診断できなかったためである。また、3.5kV では Ne ガスを表わす白色棒グラフがないのは、印加電圧が 3.5kV の場合、Ne ガスでは発光強度の強いアーク状放電が発生し、プラズマ診断に用いている複探針法では測定不能になったためである。

また、図 15 は、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 まで変化させた時の電子密度 N_e を He ガスと Ne ガスで比較したグ

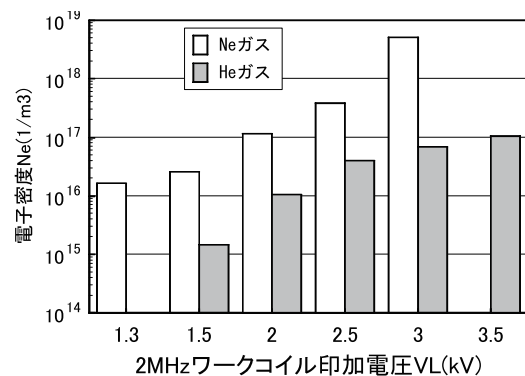


図 14. 試料ガスによる電子密度の相違
(2MHz, ガス圧 $p=133\text{Pa}$ の場合)

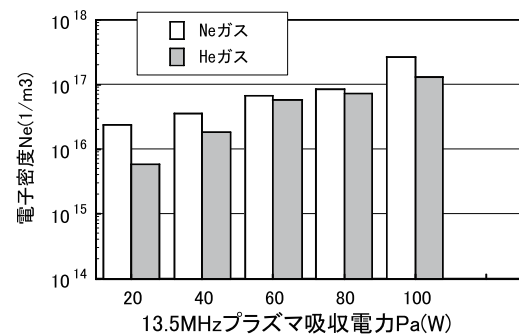


図 15. 試料ガスによる電子密度の相違
(13.5MHz, ガス圧 $p=133\text{Pa}$ の場合)

ラフである。2MHz、13.5MHz 放電に関わらず、Ne ガスでの電子密度が He ガスのそれよりも大きな値になっていることがわかる。

表 1 は、試料ガスとして用いた He ガスと Ne ガスの第一電離エネルギーを表わしている⁽⁶⁾。この表からも分るように、He ガスよりも Ne ガスの電離エネルギーが低いので、Ne ガスの方が He ガスよりも放電がしやすい。このことは、図 16 の 2 種類の試料ガスを用いて行なった放電開始電圧とガス圧の関係を表わすパッシェン曲線の測定結果からも明らかなように、Ne ガスの放電開始特性が He ガスの放電開始特性の下にきていて、Ne ガスの方が He ガスよりも低い電圧で放電が起こることを表わしている。

同じガス圧の場合、Ne ガスの方が He ガスよりもより低い電圧、電力のプラズマ生成エネルギーでよいため、実験を行なったプラズマ制御パラメーターの電圧、電力では Ne ガスの方が放電に用いられるエネルギーに余裕がでるため、同じ電圧、電力でも Ne ガスの方が電離度が増すため、この結果 Ne ガスの方が He ガスよりも大きな電子密度が得られる。

5. 結言

プラズマ CVD では、10～1,000Pa 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、研究紀要第 40 号では試料ガスとして He ガスを用いた場合の実験を行ない、この結果を報告したが、今回は試料ガスとして Ne ガスを使用し、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、He ガスでの実験結果と同様、電圧、電力の制御パラメーターと生成されたプラ

表 1. 試料ガスとして用いた He ガスと Ne ガスの電離エネルギー

ガスの種類	第一電離エネルギー(eV)
He	24.46
Ne	21.47

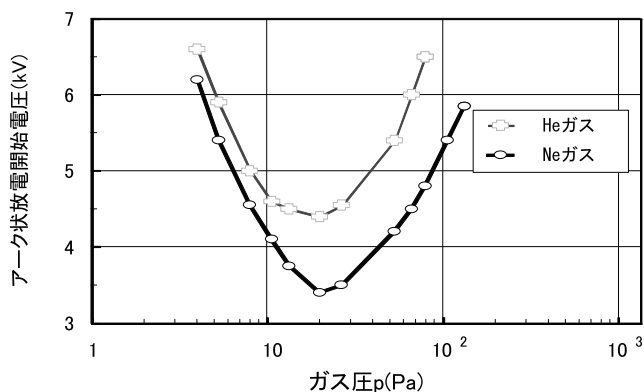


図 16. He ガス、Ne ガスのアーク状放電開始特性(2MHz の場合)

ズマのイオン電流 I_p および電子密度 N_e には相関関係がみられ、電子密度 N_e は、2MHz 高周波放電の場合には概ね 10^{15} m^{-3} から 10^{18} m^{-3} 、13.5MHz 高周波放電の場合には 10^{16} m^{-3} から 10^{18} m^{-3} の値になることがわかった。また、電子温度 T_e には相関関係が見られず、2MHz および 13.5MHz 高周波放電に関わらず、概ね 10eV(10^5 K)程度のプラズマが生成されていることがわかった。

従来試料ガスとして希ガスを用いて実験を行ってきたが、今後は Ar ガス、Xe ガスなどの試料ガスを用いても実験を行ない、試料ガスでの相違を比較検討していく予定である。

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, No.12, (2009), pp.809-810
- (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, No.12, (2009), pp.829-832
- (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, No.12, (2009), pp.811-819
- (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) 長濱 治男 : リング電極方式容量結合型高周波放電に対する 2 種類の高周波電界の
重畳効果(その 1),
福井工業大学研究紀要, 第 33 号, 第一部(2003), pp.23-29
- (6) 関口 忠, 一丸 節夫 : プラズマ物性工学(オーム社, 東京都, 1969), p.24

(平成 23 年 3 月 31 日受理)