4. プロセッシング・プラズマにおける衝突素過程 およびシミュレーション

田 頭 博 昭

(北海道大学工学部・電気工学科)

(1987年1月21日受理)

Elementary Collision Processes and Simulation of Non-equilibrium Processing Plasmas

Hiroaki Tagashira

(Received January 22, 1987)

Abstract

Elementary collision processes and computer simulation techniques relevant to non-equilibrium processing plasmas are described and examples of latest research are presented.

1. まえがき

プロセッシングプラズマには大別して、非平衡プラズマと熱プラズマがある。気中放電の古典的分類に従えば、それぞれグロー放電プラズマとアーク放電プラズマに相当すると考えられる。非平衡プラズマでは大体において電子温度が数万度であるのに対しイオン温度やガス温度は常温に近く、プラズマを構成している種の温度は名称のとうり非平衡となっている。これに対し熱プラズマでは構成種の温度はほぼ等しく、大体数千度の値をとる。

非平衡プラズマでは電子の衝突相手は主として中性分子で荷電粒子同志の相互作用は無視できることが多いのに対して熱プラズマではこれは粒子間の重要な相互作用となっている。電子エネルギー分布も、非平衡プラズマでは原則的に非マクスウエルの的であるのに対し、熱プラズマではマクスウエルの的である。

このような性質のちがいを反映して用途も異っており、非平衡プラズマは高温の電子によってガスを解

離、励起あるいは電離して要求される種をつくり、これにより膜の堆積やエッチングを行うことが多いが、熱プラズマではまずその高温が材料の合成や改質に利用される。

両者ともプラズマ化学の分野における貢献の長い歴史を持つが最近、半導体材料・素子に関連して特に非平衡プラズマへの関心のたかまりが著しい。このような事情と、さらに著者の経験の問題もあって、プロセッシングプラズマのうち非平衡プラズマを念頭において記述を進めたい。

2. 衝突過程

2.1 電子衝突

2.1.1 衝突の種類

衝突相手の内部状態の変化の有無に従って弾性衝突（無）と非弾性衝突（有）がある。非弾性衝突は変化する内部状態の種類により、回転励起、振動励起、電子状態の励起の各励起衝突、解離、電離電子付着等の衝突がある。回転、振動、電子状態の各励起へのしきいエネルギーは分子と状態の種類にもよるが、それぞれおよそ 10^{-2} , 10^{-1} , 10 eV である。プラズマプロセスでは解離衝突によって生じた解離種がラジカルとして膜堆積に重要な役割を果たすと考えられる。この著名な例として、 $e + SiH_4 \rightarrow e + SiH_3 + H$ によって生ずる SiH_3 ラジカルによる $a-Si:H$ （水素化アモルファスシリコン）膜の堆積がある。電子付着は F や Cl , O を含む分子ではかなり大きな値となることがある。また、電子-イオン再結合は非平衡プラズマが多くの場合極めて低気圧（ $1 \sim 0.02$ Torr）で維持されるので、無視しうると考えられる。

非弾性衝突のこのような寄与に対し、弾性衝突は主として電子の運動方向を変えて、これによりプラズマ中の電子のドリフトと拡散を制御していると言える。

2.1.2 運動量移送断面積

式(1)のように定義される断面積を運動量移送断面積と呼んでいる。

$$q_m(v) = \int_{\Omega} \sigma_{el}(v, \theta) (1 - \cos \theta) d\Omega(\theta) \quad \cdots \cdots (1)$$

ここに、 $\sigma_{el}(v, \theta)$ は相対速度 v で入射する電子が入射方向から角度 θ だけ散乱される時の微分散乱断面積、 Ω は立体角を表す。通常の弾性散乱断面積は

$$q_{el}(v) = \int_{\Omega} \sigma_{el}(v, \theta) d\Omega(\theta) \quad \cdots \cdots (2)$$

で表わされる。

(1) と (2) の比較から、(1) では電子の入射方向の運動量の衝突相手への移送量の分比 $(1 - \cos \theta)$ が荷重されていることがわかる。電子のドリフトや拡散に最も大きな影響を与えるのは、厳密に言うと運動量移送断面積である。散乱が等方的なら $q_m = q_{el}$ である。

2.1.3 衝突断面積の例

図4・1にモノシラン SiH_4 の電子衝突断面積を示す¹⁾。 SiH_4 は水素化アモルファスシリコン $a-Si:H$

膜堆積の原料として知られている。 q_m には電エネルギー $\varepsilon = 0.1 \sim 1$ eV において著しいラムザウアー・タウンゼント効果(谷)が認められ, また非弾性衝突である振動断面積 q_v がこのラムザウアー効果の谷に $q_v > q_m$ と大小関係が逆転するような大きな値を現しているのが特長である。 SiH_4 はまた電子励起状態はほとんど分子の解離に導くと考えられ, 従って図中に解離断面積を一括した全解離断面積 q_d だけが示されている。解離種として何が生ずるかは例えば文献(2)を参照されたい。電子付着断面積は SiH_4 では非常に小さい。プラズマ CVD により炭

図 4・1 モノシラン SiH_4 の電子衝突断面積¹⁾

素系の膜を作成するのに用いられるメタンも分子構造の類似性から非常に似た断面積を持っている³⁾。解離や電離による生成物は文献(4)を参照されたい。その他のガスの断面積については例えば文献(5)を参照されたい。

2.2 イオン, ラジカルの衝突

弾性衝突はこれらの種のドリフトや拡散を決める。プロセッシングを実行する衝突として非弾性衝突(衝突反応)が重要である。メタンの例を表 4・1 (ラジカル)と表 4・2 (イオン)に示す。ラジカル反応の特徴的なものの一つは例えば表 1 の反応(1)で示される引き抜き反応(CH_4 から H により H が引き抜かれていく)である。反応(3)は association 反応によって C_2H_6 の電子励起状態 $C_2H_6^*$ をつくるが, これは反応(4)と(5)により自動解離することを示す。イオンについても同様である。ほかに, 高速のイオンが低速の中性種と電荷交換衝突を起し, 低速のイオンと高速の中性種を生ずる過程がある。

2.3 中性原子, 分子の衝突

基底状態の原子, 分子では, ここで扱おうエネルギー範囲では電子状態の励起は生じない。

表 4・1 CH_4 プラズマ中のラジカル反応⁶⁾

Reaction	Rate constant
(1) $CH_4 + H \rightarrow CH_3 + H_2$	3.2 (-18)
(2) $CH_4 + CH_3 \rightarrow CH_3 + CH_4$	5.0 (-23)
(3) $CH_4 + CH_2 \rightarrow C_2H_6^*$	1.66 (-11)
(4) $C_2H_6^* \rightarrow CH_3 + CH_3$	1.0 (+9)±
(5) $C_2H_6^* \rightarrow C_2H_4 + H_2$	1.0 (+7)±
(6) $C_2H_6^* + M \rightarrow C_2H_6$	1.0 (-10)
(7) $CH_4 + CH \rightarrow C_2H_5^*$	1.0 (-10)
(8) $C_2H_5^* \rightarrow C_2H_4 + H$	1.0 (+9)±
(9) $C_2H_5^* + M \rightarrow C_2H_5$	1.0 (-10)
(10) $CH_4 + C \rightarrow C_2H_4^*$	1.0 (-11)
(11) $C_2H_4^* \rightarrow C_2H_2 + H_2$	1.0 (+9)±
(12) $CH_3 + H \rightarrow CH_2 + H_2$	1.20 (-20)
(13) $CH_3 + CH_2 \rightarrow C_2H_4 + H$	3.31 (-11)
(14) $CH_2 + CH_2 \rightarrow C_2H_2 + H_2$	5.25 (-11)
(15) $C_2H_6 + H \rightarrow C_2H_5 + H_2$	3.27 (-17)
(16) $C_2H_6 + CH_3 \rightarrow C_2H_5 + CH_4$	1.98 (-25)
(17) $C_2H_5 + H \rightarrow CH_3 + CH_3$	6.17 (-11)
(18) $C_2H_5 + H \rightarrow C_2H_4 + H_2$	3.09 (-12)
(19) $C_2H_4 + H \rightarrow C_2H_3 + H_2$	3.11 (-20)
(20) $C_2H_3 + H \rightarrow C_2H_2 + H_2$	1.66 (-11)
(21) $C_2H_2 + H \rightarrow C_2H + H_2$	4.73 (-16)
(22) $C_2H_2 + C_2H_2 \rightarrow C_4H_3 + H$	2.70 (-44)
(23) $C_2H_2 + C_2H \rightarrow C_4H_2 + H$	6.61 (-11)

表4・2 CH₄ プラズマ中のイオン反応⁶⁾

Reaction	Rate constant
(24) $C^+ + CH_4 \rightarrow C_2H_2^+ + H_2$	4.0 (-10)
(25) $C^+ + CH_4 \rightarrow C_2H_3^+ + H$	8.0 (-10)
(26) $CH^+ + CH_4 \rightarrow C_2H_2^+ + H_2 + H$	1.43 (-10)
(27) $CH^+ + CH_4 \rightarrow C_2H_3^+ + H_2$	1.09 (-9)
(28) $CH^+ + CH_4 \rightarrow C_2H_4^+ + H$	6.5 (-11)
(29) $CH^+ + H_2 \rightarrow CH_2^+ + H$	1.2 (-9)
(30) $CH_2^+ + CH_4 \rightarrow C_2H_4^+ + H_2$	8.4 (-10)
(31) $CH_2^+ + CH_4 \rightarrow C_2H_5^+ + H$	3.6 (-10)
(32) $CH_2^+ + H_2 \rightarrow CH_3^+ + H$	1.6 (-9)
(33) $CH_2^+ + CH_4 \rightarrow CH_3^+ + CH_3$	1.38 (-10)
(34) $CH_2^+ + CH_4 \rightarrow C_2H_2^+ + 2H_2$	3.97 (-10)
(35) $CH_2^+ + CH_4 \rightarrow C_2H_3^+ + H + H_2$	2.31 (-10)
(36) $CH_3^+ + CH_4 \rightarrow C_2H_5^+ + H_2$	1.2 (-9)
(37) $CH_3^+ + CH_4 \rightarrow CH_4^+ + CH_3$	1.36 (-10)
(38) $CH_4^+ + CH_4 \rightarrow CH_5^+ + CH_3$	1.5 (-9)
(39) $CH_4^+ + H_2 \rightarrow CH_5^+ + H$	3.3 (-11)
(40) $C_2H_2^+ + CH_4 \rightarrow C_2H_3^+ + CH_3$	4.1 (-9)
(41) $C_2H_2^+ + CH_4 \rightarrow C_3H_4^+ + H_2$	6.25 (-10)
(42) $C_2H_2^+ + CH_4 \rightarrow C_3H_5^+ + H$	1.44 (-9)
(43) $C_2H_3^+ + CH_4 \rightarrow C_3H_5^+ + H_2$	1.7 (-10)
(44) $C_2H_3^+ + C_2H_4 \rightarrow C_2H_5^+ + C_2H_2$	2.3 (-10)
(45) $C_2H_3^+ + C_2H_2 \rightarrow C_4H_5^+$	1.49 (-9)
(46) $C_2H_4^+ + C_2H_4 \rightarrow C_3H_5^+ + CH_3$	3.9 (-10)
(47) $C_2H_4^+ + C_2H_4 \rightarrow C_4H_8^+$	4.3 (-10)
(48) $C_2H_4^+ + C_2H_6 \rightarrow C_3H_5^+ + CH_4$	2.03 (-13)
(49) $C_2H_4^+ + C_2H_6 \rightarrow C_3H_7^+ + CH_3$	1.32 (-11)
(50) $C_2H_5^+ + C_2H_2 \rightarrow C_4H_7^+$	6.7 (-10)
(51) $C_2H_5^+ + C_2H_4 \rightarrow C_3H_5^+ + CH_4$	3.1 (-10)
(52) $C_2H_5^+ + C_2H_4 \rightarrow C_4H_9^+$	3.0 (-10)
(53) $H_2^+ + H_2 \rightarrow H_3^+ + H$	2.5 (-9)
(54) $H_3^+ + CH_4 \rightarrow CH_5^+ + H_2$	1.6 (-9)
(55) $H_3^+ + C_2H_2 \rightarrow C_2H_3^+ + H_2$	1.94 (-9)
(56) $H_3^+ + C_2H_4 \rightarrow C_2H_5^+ + H_2$	1.9 (-9)

回転, 振動状態への励起とその交換に限られる。後者はガス温度の上昇に重要な役割を果たすといわれる。励起種については, 励起の交換の他に, 相手を電離する, いわゆるペニング効果が有名である。

なお, 電子, 原子, 分子衝突のデータの探索法としては文献(7)を参照されたい。

3. プロセッシングプラズマのシミュレーション

3.1 プラズマのモデリングのいろいろ

非平衡プラズマプロセスは種々の形の装置で行われるが, 平行平板電極系でガス圧0.02~1 Torr, ギャップ長数cm, 13.56MHz等のRF電界を加えて行うものが一つの標準であろう。多くのシミュレーション

もこのような条件を設定しているようである。

さてプラズマのモデリングには、現実への即し方にいくつかの段階がある。非平衡プラズマによるプロセスでは、電子衝突により、必要なラジカルを発生し、これにより堆積やエッチングを行う。従って最も簡単なモデルでは、外部電界下のガス中の電子の挙動、例えばエネルギー分布や平均電子エネルギー、を求める形をとる。ここではこれをモデルⅠと呼ぶことにする。次のモデルⅡでは、生成されたイオンやラジカルの反応を考慮したものとなる。モデルⅢでは、モデルⅠで無視したイオンや電子による空間電荷による電界をも考慮し、ギャップ内における電界の強弱に伴うプラズマの空間的構造を考慮している。

計算手法としては、モンテカルロ法によるものと、プラズマ構成種に対する連続の式やレート方程式を数値的に解く方法が用いられている。

3.2 シミュレーション例

3.2.1 モデルⅠ

このモデルでは電界下のガス中の電子の挙動を明らかにし、電子エネルギー分布や平均電子エネルギー、レート係数などを求める。

a. モンテカルロ法

電界下にあるガス中の電子は、電界からの力と衝突による力を受ける。前者はニュートンの式により取扱い可能である。後者の効果を取り扱うには、衝突の時刻、種類、散乱方向を知る必要がある。これらは確率的に決まるのが本質であるため、モンテカルロ法が、物理過程の本質の表現のために用いられる。

確率分布をもつ事象の生起時点の判断は、よく知られているように、その累積分布を $[0, 1]$ の一樣乱数と比較し、両者が等しくなるような累積分布の引数を見出すことによってなされる。

この手法が上述の確率的な諸量の決定に用いられる。衝突の時刻 τ の決定の例を述べると、

$$\xi = \exp\left(-\int_0^{\tau} N v q_{\tau} d\tau\right)$$

から τ を求めればよい。ここに $\tau=0$ はこの衝突のすぐ前の衝突の生起時刻、 N はガス分子数密度、 v は電子とガス分子相対速度、 q_{τ} は全衝突断面積で、例えば図4・1に示す断面積の総和である。 ξ は $[0, 1]$ の一樣乱数である。原料ガスの分解が少なければ N は定数であるが、 v と q_{τ} は一般に時刻 τ の関数となっている点に注意が必要である。

$\tau=0$ での電子速度 v_0 を与えて τ を算出すれば、その間の電界から時刻 τ における衝突時の電子速度が算出される。これから電子エネルギーが計算され、これと図4・1に示すようなデータから前述の事象の生起の判定法を用いて衝突の種類が決定される⁸⁾。これでエネルギー損失が決まるので、これを衝突時のエネルギーから差引くことにより衝突後の速さがきまる。衝突後の飛行方向(散乱方向)も微分散断面積を用い、先の判定法を用いて決定される⁸⁾。ここで決定された速度 v_{τ} を v_0 とし、 τ を0とリセットして、同じ過程をくり返すことにより、次の衝突時刻が決定される。このようにして求められた電子運動から定義に従っ

てサンプルすることにより、必要な物理量が得られる。

図4・2にこのような手法で求められた13.56 MHz電界下の電子スオーム(群)について平均電子エネルギー $\bar{\epsilon}$ と平均速度 $\bar{W}_v$ の変化を、図4・3には電子エネルギー分布 F_0 を示す⁹⁾。電界の実効値 E/P_0 (0°C換算のガス圧) $=65 \text{ V cm}^{-1} \text{ Torr}^{-1}$ である。

このように電子エネルギー分布 F_0 が求められると、レート係数は

$$K_j = \int_0^\infty v q_j F_0 d\epsilon \quad \dots\dots (3)$$

として算出される。例えば SiH_4 の電子衝突による全解離に対するレート係数は(3)の q_j として図4・1の q_d を用いればよい。

なお図4・3には同じ実効値の直流電界下における電子エネルギー分布が比較のため示してある。また F_1 は、電子エネルギー分布 $F = F_0 + F_1 \cos \theta$ と展開した時の F_1 で、直流電界下のドリフトを表現する成分であり、交流電界下では平均すれば0となることがよく示されている。

b. ボルツマン方程式

電子スオームはボルツマン方程式によっても解析される。その一例について考え方の梗概を示そう¹⁰⁾。

まず、電子エネルギー分布はルジャンドル関数により展開する¹¹⁾。また印加電界への依存性はフーリエ級数により展開する¹¹⁾。ルジャンドル展開の次数を ℓ 、フーリエのそれを K で表すと、 $\ell + K = 2$ までとる展開が交流電界の1周期内の諸量の変動を表現するためには最低次のものとなるが¹⁰⁾、これによりArガス中の電子エネルギー分布 $f \ell^K$ を求めた結果を図4・4に示す。図4・4で E/N は電界とガス分子数密度の比で、 $1 \text{ Td} = 10^{17} \text{ V cm}^2$ を表し、 E/P_0 に換算すると $0.354 \text{ V cm}^{-1} \text{ Torr}^{-1}$ に相当する。

図4・2 SiH_4 プラズマ中の平均電子エネルギー $\bar{\epsilon}$ と平均電子速度 $\bar{W}_v$

図4・3 SiH_4 プラズマ中の電子エネルギー分布

図4・4 Ar プラズマ中の電子エネルギー分布

図4・4の $f_0^0(\epsilon)$ を用いて式(3)により各種のレート係数を求めることができる。また2次のフーリエ分布 $f_0^2(\epsilon)$ の値が大きな電子エネルギーにおいて $f_0^0(\epsilon)$ より大きくなる傾向は、電子エネルギー分布の裾が電界の変動とともに大きく揺らぐことを予測している。

3.2.2 モデル II

ここでは、ラジカルやイオン反応も考慮したシミュレーション例を示す⁶⁾。ガスは CH_4 でシミュレーションのスキームを図4・5に示す。電子エネルギー分布はプローブ法による実測あるいはモデルIによって求められる。 CH_4 分子の全電離レート係数 K_i 、全励起レート係数 K_d がこれを用いて、式(3)から求められる。 CH_4 ガスのプラズマ内滞留時間 τ_R も考慮されている。

図4・5のスキームによるラジカル、イオン反応は次のレート方程式で表される。

図4・5 CH_4 プラズマ中のラジカル、イオン反応

$$\frac{dn_0}{dt} = \frac{Q_M}{V} - (K_d + K_i) n_e n_0 + \sum_{j \ell m} K(j \ell : m O) n_j n_\ell - \sum_{j \ell m} K(O j : \ell m) n_0 n_j - \frac{n_0}{\tau_R} \quad \dots\dots (4)$$

$$\frac{dn_i}{dt} = (K_d^i + K_i^i) n_e n_0 + \sum_{j \ell m} K(\ell m : i j) n_\ell n_m - \sum_{j \ell m} K(i j : \ell m) n_i n_j - D_i n_i \quad \dots\dots (5)$$

式(4)は CH_4 分子数密度 n_0 に対する式、(5)は i 番目の種の数密度 n_i に対する式である。 Q_M は単位時間当たり放電室内に導入される CH_4 の数、 V は放電室の体積を示す。 K_d^i と K_i^i は i 番目の種の解離および電離レート係数、 $K(i j : \ell m)$ は i 番目の種と j 番目の種の衝突による ℓ 番目と m 番目の種の生成のレート係数、 D_i はドリフト(イオン)または拡散(中性種)により i 番目の種がプラズマ中から去るレートである。中性種に対しては $D/N = 10^{19} \text{ cm}^{-1} \text{ s}^{-1}$ と置いている。 N は種の全数密度である。ドリフト項はプラズマの中性条件が満足されるように選んだ。 K_d は測定値を用い¹²⁾、 K_d^i 、 K_i^i は表1、表2に示すものを用いた。ガス温度は300 Kとしている。堆積面との相互作用としては、 CH_3 ラジカルの表面付着確率は1(図4・6実線)または 10^{-3} (図4・6破線)とし、安定分子の付着確率は0とした。20 W以下で測定した n_e とRF電力の関係が 10^3 W まで成立すると仮定している。ガス圧力は0.22 Torrとした。 $dn_i/dt = 0$ と

して iteration 法で解いた結果は図4・6に示すとおりであるが、ラジカルとしては CH_3 が断然多く、実験結果からの推測を裏書きした形であるが、 CH_3 の表面付着確率が 10^{-3} とした破線の場合は CH_2 ラジカルの存在も無視しえないことが示された。

モデルⅡのシミュレーションとしては他に、 SiH_4 に対するもの¹²⁾、 $\text{Ar} + \text{SiH}_4$ に対するもの¹³⁾がある。

3. 2. 3 モデルⅢ

外部電界のみならず電極間に存在する電子やイオンによる空間電荷電界も計算し、プラズマに関する諸量の空間分布を考慮したモデルである。

このモデルでは注目する種または量に対する連続の式あるいは保存の式によってプロセッシングプラズマをシミュレートする。その1例を挙げれば¹⁴⁾、電子に対する連続の式、イオンに対する連続の式、ポアソンの式、電子エネルギー保存の式を次のように立てて、これを解いている。

$$\frac{\partial n_e}{\partial t} + \nabla \cdot j_e = r_i$$

$$\frac{\partial n_i}{\partial t} + \nabla \cdot j_i = r_i$$

$$\nabla^2 V = \frac{e}{\epsilon} (n_+ - n_e)$$

$$\frac{\partial}{\partial t} \left(\frac{3}{5} n_e h_e \right) + \nabla \cdot q_e + j_e \cdot e E + r_i H_i = 0$$

ここに、 n_e と n_+ はそれぞれ電子とイオン数密度、 j_e は電子流密度、 r_i はガス分子に対する電子衝突による電離周波数、 h_e は電子のエンタルピー、 q_e はエンタルピー束、 E は電界、 H_i は電離衝突当り電子が失うエネルギーである。接地側($x=0$)および電力を供給する側($x=L$)の電極に対して通常用いられる境界条件を課してこれらの式を解く。電極からの二次電子放出は、電力供給側の電極からのみなされると仮定している。また、定量的に見ると非常に大きな仮定であるが、電子エネルギー分布はマクスウェル分布であるとしている。

図4・6 CH_4 プラズマの RF 電力に対するラジカル、イオン種の変化

数値解法としては時間領域において周期的境界条件を課し、解を時間領域ではフーリエ展開して 11 項まで採用し、空間領域では 70 個の線型基底関数を用いガラーキン法によっている。1 周期を 175 分割して、 n_e , n_+ , V , h_e の 4 つの量について解くと、 $11 \times 70 \times 4 \times 175 = 537000$ 個のメモリーが要求され、CPU 時間は、CRAY-1 で 10 時間であった。また収束解を得る初期条件設定がむづかしい。

計算は電離電圧が 15.578 eV, 電子および正イオン移動速度がそれぞれ 2.10^5 および 2.10^3 cm²/Vs, というモデルガスについて、ガス圧 0.8 Torr, 電極間隔 $L = 3.525$ cm, RF 電圧最大値 112.7 V, 直流バイアス電圧 $V_{DC} = 244$ V で行われた。その結果得られた電子数密度 n_e , 正イオン数密度 n_+ を図 4・7 に、電位と電界を図 4・8 に示す。なお電源周波数は 13.56 MHz である。

図 4・7 モデル RF プラズマの電子、イオン数密度分布

図 4・8 モデル RF プラズマの電位、電界分布

n_e と n_+ は図 4・7 からわかるように電源周波数の一周期内においてもほとんど変化しない。また電極中央部では両者はよく一致し、この部分は、いわゆる弱電離準中性プラズマとなっていることがわかる。電極近傍では正イオン密度が優勢となり、これが図 4・9 に示すように電極近傍の電極降下をひき起している。等面積の平行平板であるが、直流バイアス電圧 V_{DC} のため電界分布は非対称となっている。

以上述べたモデルと似ているが電子エネルギー分布をマクスエル型と仮定せず、必要な諸定数の電界による変化を実測値またはモデル I から求める形のシミュレーションも行われており、電界分布をはじめ、多くの知見が得られている¹⁵⁾。ガスは N_2 で、電極間隔 1 cm, ガス圧は 2 Torr, 電源周波数は 10 MHz であった。

モデル III のシミュレーションにはモンテカルロ法によるものもある。その存在意義は、気圧が 10 mTorr のオーダーにおいては衝突回数が不足のため、電極を離れて加速される電子のエネルギー分布はビーム状成分を含み、従ってエネルギー分布がダブルピークを持って、決してマクスエル分布のような“温和な”形では表されていないことにある。プラズマ部分の電界を 0 とおくなど、かなり簡単化したシミュレーションでは

あるが、エネルギー分布のダブルピークを明らかにした結果を図4・9に示す¹⁶⁾。同様のシミュレーションが他に行われている^{17, 18)}。

モデルⅢのシミュレーションの今後の課題としては、気相および表面におけるラジカル、イオン反応を組みこむこと、計算の効率を上げて計算時間を短縮すること、連続の式によるシミュレーションで電子エネルギー分布におけるダブルピークの対応を可能とすること、もっと複雑な形状の装置のシミュレーションを試みることで、ECRプラズマのような磁界が加えられた場合のシミュレーション法を開発すること等を挙げることができる。

図4・9 低気圧プラズマ中の2ピークをもつ電子エネルギー分布

参 考 文 献

- 1) Y. Ohmori, M. Shimozuma and H. Tagashira : J. Phys. D **19** (1986) 1029-1040.
- 2) J. Perrin, J. P. M. Schmitt, G. de Rosny, B. Drevillon, J. Huc and A. Lloret : Chem. Phys. **73** (1982) 383.
- 3) Y. Ohmori, K. Kitamori, M. Shimozuma and H. Tagashira : J. Phys. D **19** (1986) 437-455.
- 4) C. E. Melton and P. S. Rudolph : J. Chem. Phys. **47** (1967) 1771-1774.
- 5) M. Hayashi : *Recommended Values of Transport Cross Sections for Electrons in Atomic and Molecular Gases* (1981) Inst. Plasma Phys., Nagoya Univ. Report IPPJ-AM-19.
- 6) K. Tachibana, M. Nishida, H. Harima and Y. Urano : J. Phys. D **17** (1984) 1727-1742.
- 7) 気体放電シミュレーション技法, 電気学会技術報告(Ⅱ部)第140号(昭和57年)第2章.
- 8) 同上, 第3章
- 9) H. Tagashira, K. Kitamori, M. Shimozuma and Y. Sakai : *Proc. 7th Int. Symp. on Plasma Chemistry* (1985) 1337-1342.
- 10) T. Makabe : *Proc. 7th Int. Symp. on Plasma Chemistry* (1985) 1331-1336.
- 11) 文献 7, 第4章.
- 12) K. Tachibana, T. Okuyama, H. Harima and Y. Urano : *Proc. 7th Int. Symp. on Plasma Chemistry* (1985) 588-593.
- 13) 堤井信力 : プラズマ基礎工学(内田老鶴圃, 東京, 1986) 254.
- 14) David B. Graves and Klavs F. Jensen : IEEE Trans. Plasma Science **PS-14** (1986) 78-91.
- 15) 佐藤信安, 田頭博昭 : 電気学会放電研究会資料(1985) EP-85-23/ED-85-99.
- 16) M. J. Kushner : J. Appl. Phys. **54** (1983) 4958-4965.
- 17) L. E. Kline : IEEE Trans. Plasma Science **PS-14** (1986) 145-155.
- 18) 田頭博昭, 北守一隆, 下妻光夫 : 第3回プラズマプロセッシング研究会資料(昭和61年) 143-146.