



室蘭工業大学

学術資源アーカイブ

Muroran Institute of Technology Academic Resources Archive



TMS, TEOS, H₂O vapours および N₂ の電子衝突断面積と 電子輸送解析

メタデータ	言語: jpn 出版者: 公開日: 2018-06-06 キーワード (Ja): キーワード (En): 作成者: 川口, 悟 メールアドレス: 所属:
URL	https://doi.org/10.15118/00009633

氏 名 川口 悟

学位論文題目 TMS, TEOS, H₂O vapours および N₂ の電子衝突断面積と電子輸送解析

論文審査委員 主査 教授 佐藤 孝紀
准教授 川口 秀樹
准教授 渡邊 浩太

論文内容の要旨

コンピュータの性能向上とシミュレーション技法の発達によって、気体放電プラズマの高精度なシミュレーションが可能となり、シミュレーションから得られる化学種の生成量や時空間プロファイルに関する情報が、プラズマ中における化学反応過程の解明ならびにプラズマプロセスの性能の予測に不可欠なものとなりつつある。プラズマシミュレーションでは、プラズマ中の化学種の生成、消失および輸送は連続の式によって表されるため、この式に用いられる反応レート係数および輸送係数に正確な値が必要となる。特に、電子は電界によって容易に加速され、電子と気体分子の衝突によって放電の生成・維持を担う電子やイオンを生成するとともに、電子と気体分子の衝突で生成される活性な解離種は、プラズマ中の化学反応の起点となるため、正確な電子輸送係数と電子衝突反応に係る反応レート係数が要求されている。これらの係数は、電子衝突断面積を用いた電子輸送解析によって導出することができるため、詳細かつ正確な電子衝突断面積セットへの要求がきわめて高まっている。

本論文では、プラズマ CVD 法による薄膜堆積における原料ガスであるテトラメチルシラン[TMS, Si(CH₃)₄]蒸気とテトラエトキシシラン[TEOS, Si(OC₂H₅)₄]蒸気、水と接した放電プラズマの解析において重要となる水蒸気および基本的なガスである N₂ ガスの詳細かつ正確な電子衝突断面積セットを電子スオーム法によって決定し、これらのガス中において電子輸送解析を行った結果について述べている。電子輸送解析においては、現段階で最も定量的に優れた Monte Carlo simulation (MCS)を用い、電子輸送係数を正確に導出することで電子スオーム法によって決定される電子衝突断面積の精度を高めた。断面積セットの詳細さを高め、利用者の要求に応えるため、決定した TMS, TEOS, 水蒸気および N₂ ガスの断面積セットでは、それぞれ 17 種類, 20 種類, 12 種類および 6 種類の活性種の生成に関する断面積を考慮した。

決定した断面積セットを用いた MCS によって得られた電子ドリフト速度、縦方向拡散係数および実効電離係数の計算値は、実測値を十分に再現することがわかり、決定した断面積セットの妥当性が示された。また、水蒸気中の電子輸送解析では、超弾性衝突を考慮し、100 Td 以下における電子ドリフト速度と縦方向拡散係数において、超弾性衝突がわずかに影響を及ぼすことが明らかとなった。N₂ ガスにおいては、2,500 Td 以上の高換算電界において、換算電界の増加に伴って電離係数の実測値が低下する理由を解析し、非弾性衝突後の電子の散乱方向依存性と電離衝突で生成される電子のエネルギー分布が影響する可能性を見出した。

Abstract

Thanks to the improvement of computers' performance and the increase of their memory size, computer simulation of discharge plasma, which is used for a wide variety of applications, such as plasma CVD, plasma etching, gas laser, *etc.*, has been performed to estimate generation rate and spatiotemporal variation of the density of chemically active species. The information concerning the generation rate and the density of the active species is indispensable for the prediction of chemical reactions induced in the plasma and the performance of plasma processes. In the plasma simulation, continuity and rate equations, which respectively describe the generation, loss, and transport of charged species, and the generation and loss of chemical species in the plasma, are solved; therefore, accurate transport and rate coefficients must be used in the equations to improve the accuracy of the simulation. Electrons are accelerated easily by an electric field and collide with gas molecules, generating charged and active species, which induce chemical reactions; that is, electrons play an important role in generating and maintaining discharge plasma. Therefore, the accurate electron transport coefficients and rate coefficients are needed for the accurate plasma simulation. Some of those coefficients are measured, but most of the coefficients are often deduced by electron transport analysis using electron collision cross sections. Hence, accurate, reliable, and detailed electron collision cross section sets are required.

In this work, accurate, reliable, and detailed cross section sets of tetramethylsilane [TMS, Si(CH₃)₄], tetraethoxysilane [TEOS, Si(OC₂H₅)₄], and water vapours, and nitrogen gas are estimated by the electron swarm method. The estimated cross section sets of TMS, TEOS, and water vapours, and nitrogen gas include information on generation of 17, 20, 12, and 6 kinds of charged and active species, respectively, making them more detailed. Electron transport coefficients in the gases are deduced by Monte Carlo simulation using the cross section sets to increase accuracy, and the transport coefficients are compared with measured data to confirm the reliability of the cross section sets.

The values of electron drift velocity, longitudinal diffusion coefficient, and effective ionization coefficient deduced from the estimated cross section sets are found to reproduce the measured data, confirming the reliability of the estimated cross section sets. In water vapour, superelastic collisions between rotationally excited water molecules and electrons are found to slightly affect the values of electron drift velocity and longitudinal diffusion coefficient below 100 Td. In nitrogen gas, it is found that anisotropic electron scattering after inelastic collisions and the distribution probability of residual energy between scattered and ejected electrons after ionization must be considered to reproduce the measured ionization coefficient above 2,500 Td, where the values of the ionization coefficient reach the maximum and then decrease with increasing a reduced electric field.

論文審査結果の要旨

コンピュータの性能向上とシミュレーション技法の発達によって、気体放電プラズマの高精度なシミュレーションが可能となり、シミュレーションから得られる化学種の生成量や時空間プロファイルに関する情報が、プラズマ中における反応過程の解明ならびにプラズマプロセスの性能の予測に不可欠なものとなりつつある。プラズマシミュレーションでは、プラズマ中の化学種の生成、消失および輸送は連続の式によって表されるため、この式で用いられる反応レート係数および輸送係数に正確な値が必要である。特に、電子は電界によって容易に加速され、電子と気体分子の衝突反応が放電の生成・維持を担う電子やイオンを生成するとともに、プラズマ中における化学反応の起点となるため、正確な電子輸送係数と電子衝突反応に係る反応レート係数が要求されている。これらの係数は、電子衝突断面積を用いた電子輸送解析によって導出することができるため、詳細かつ正確な電子衝突断面積セットが求められている。

本論文では、プラズマCVD法による薄膜堆積における原料ガスであるテトラメチルシラン [TMS, $\text{Si}(\text{CH}_3)_4$] 蒸気とテトラエトキシシラン [TEOS, $\text{Si}(\text{OC}_2\text{H}_5)_4$] 蒸気、水と接した放電プラズマにおいて重要となる水蒸気および基本的なガスである窒素の詳細かつ正確な電子衝突断面積セットを電子スオーム法によって決定され、これらのガス中において電子輸送解析を行った結果が述べられている。電子輸送解析においては、現段階で最も定量的に優れたMonte Carlo simulation (MCS) を用い、電子輸送係数を正確に導出することでスオーム法によって決定される電子衝突断面積の精度を高めている。また、断面積セットの詳細さを高めるために、決定したTMS, TEOS, H_2O vapours および N_2 の断面積セットでは、それぞれ 17 種類, 20 種類, 12 種類および 6 種類の活性種の生成に関する断面積が考慮されている。

決定した断面積セットを用いた MCS によって得られた電子ドリフト速度、縦方向拡散係数および実効電離係数の計算値は、実測値を非常によく再現し、提案さ

れた断面積セットの妥当性が示された。また、水蒸気においては、超弾性衝突が 100 Td 以下における電子ドリフト速度と縦方向拡散係数に影響を及ぼすことを明らかにした。N₂ ガスにおいては、2500 Td以上の範囲において見られる換算電界の増加に伴って低下する電離係数の実測値を再現するためには、非弾性衝突後の電子の散乱方向依存性と電離衝突で生成される電子のエネルギー分布を考慮する必要があることを示した。

この論文で提案された電子衝突断面積セットおよび明らかにされた気体中の電子輸送に関する知見は、気体放電基礎過程のさらなる解明および気体放電応用分野の発展に寄与する重要なものであり、博士（工学）の学位論文に値すると判定される。