

講座：プラズマ実験入門II

2. プラズマの作り方

2.1 直流放電を用いる方法

神 藤 正 士
(静岡大学工学部)
(1993年3月30日受理)

Plasma Production by DC Discharge

Masashi Kando
(Received March 30, 1993)

Abstract

The DC discharge which includes the fundamentals of plasma productions is briefly explained with relation to electron emission from cathode, electron production and loss processes. As a typical example of DC discharge, the structures of glow discharge are discussed.

Keywords:

thermionic emission, field emission, work function, oxide-coated cathode, glow discharge, arc discharge,

1. はじめに

気体中の原子や分子は、それら相互間のあるいは高エネルギーの電子やイオンとの衝突を通じて、または光や放射線からエネルギーを獲得して電離し、電子とイオンになる。これらは相互に接近して結合し、再び中性の原子或いは分子に戻る過程により、または気体の原子・分子との衝突を繰り返しながら拡散し、放電管壁に到達してその面上で再結合して消失する。このように、気体中では荷電粒子の発生と消滅が同時に生じていて両者の釣合の下に荷電粒子の密度が定まる。従って、プラズマの生成とは荷電粒子の発生過程を促進し、損失過程を抑制することにより気体中の電子やイオンの密度を高くすることであり、プラズマの作

り方には発生過程や損失過程の抑制法に工夫を凝らすことにより様々な方法が考案されている。

直流放電とは、直流電界によって電子を加速し中性原子・分子との衝突電離によって起こす放電であり、19世紀初頭から本格的に始まった電離気体の研究で多用されたプラズマ生成法である。直流放電の開始条件に関しては多くの興味深い研究[1]があり重要であるが、ここでは紙面の都合により割愛する。本節では、直流放電を理解する上で関係の深い電子の発生・消滅過程、電極からの電子放出ならびに2, 3の直流放電の具体例について説明する。



画：浜 秀昭（中部大学漫画研究会）

2. 電子の発生・消滅過程

(a) 電離

一般に、粒子が持っているエネルギーは衝突を通じて相手の粒子に与えられる。電子が直流電界の下で獲得するエネルギーは、衝突と衝突の間に進む距離（自由行程）に比例して増大する。仮に、気体の圧力が高く平均的な自由行程（平均自由行程）が短い場合、その間の静電ポテンシャルが低いいため電子が電界から獲得するエネルギーが少ない上に高頻度で起こる衝突で失うエネルギーも大きい。電子のエネルギーは低く抑えられる。しかしながら、電子の他粒子との衝突頻度が高い場合には、電子のエネルギー分布はたとえ当初それらが全て同じエネルギーを持っていたとしても衝突を通じて緩和されるため、平衡状態ではガウス型のマクスウェル分布に従う。このため、少数ではあるが気体の原子・分子を電離可能な高エネルギーをもつ電子が存在する。

さて、気体の原子・分子を衝突電離する電子のエネルギーには気体の種類で決まるしきい値がある。また、電離の起こり易さは電子のエネルギーに依存し、これを定量的に表わすパラメタが電離断面積： σ_i である。図1は電子のエネルギー： ε と σ_i の関係である。 σ_i は気体によって相違し、 σ_i が大きいほど電離し易いことを意味する。電子が

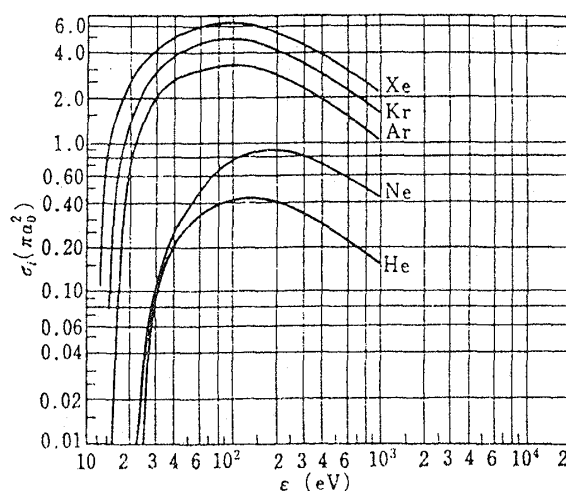


図1 電子のエネルギー ε [eV] と電離断面積 σ_i [πa_0^2] の関係[2]。ここで、 $a_0 = 0.0528$ [nm] はボーア半径。

マクスウェル分布をしていることを考慮して図1のデータを使うことにより単位時間あたりに電離の起こる回数、即ち電離周波数を算出することが出来る。電離周波数が高いことは電子の発生が多いことであり、放電を維持し易いことを意味する。従って、電離断面積は放電現象を理解する上で重要であり、プラズマプロセスで使われる反応性ガスを含む種々の気体に対して測定値が用意されている。

(b) 拡散

プラズマ中の電子やイオンの平均自由行程が容器の大きさに比べて著しく短い場合、それらは気体原子・分子と衝突を繰り返しながら低密度の容器壁に向かって拡散して行く。拡散速度 v_D は電子またはイオンの密度を n とすると

$$v_D = -D \nabla n / n$$

で示される。ここで、 D は拡散係数で、 $D = kT / m\nu$ であり、 k はボルツマン定数、 T 、 m および ν は電子またはイオンの温度、質量および衝突周波数である。 ν は気体圧力に比例するため、圧力が高くなると拡散速度が遅くなる。電子はイオンに比べて大きい拡散速度を持つが、プラズマ中では電子とイオンの間に働くクーロン力により両者は連れだつた運動をするため、電子とイオンはほぼ同じ拡散速度になる。この現象は両極性拡散と呼

ばれる。

磁界が印加されると、電子やイオンは磁力線を横切る方向には磁力線に巻き付いた回転運動（サイクロトロン運動）を強いられるため、拡散が抑えられる。従って、磁界は荷電粒子の損失を抑えるのに効果的である。

(c) 再結合

正の電荷を持ったイオンは電子と遭遇して再結合し中性の原子・分子になる。この過程は電子とイオンの密度が高いほど起こり易い。再結合の結果生じた励起原子・分子が光子の放出により基底状態に戻る場合、放射再結合と呼ぶ。分子状正イオンと電子の再結合では、励起エネルギーが分子の解離に使われることが多く、解離再結合と呼ばれる。その他、三体再結合等いくつかの再結合があり、その起こり易さは電子温度や密度に強く依存する。

3. 陰極からの電子放出[3]

直流放電を安定に発生するには、陰極から連続して十分な量の電子が供給されることが必要である。ここでは、金属の内部から電子が放出される機構について概説する。

(a) 熱電子放出

金属内の伝導帯にある自由電子は、真空準位

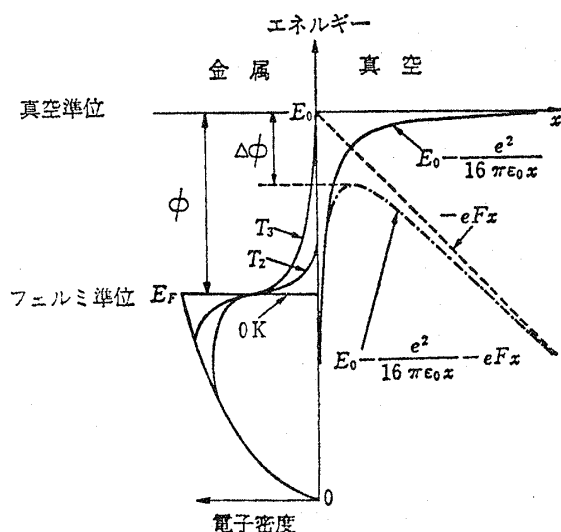


図2 金属内の伝導帯の電子のエネルギー分布。Fは印加電界、金属の温度： T は $T_3 > T_2$ 。

E_0 のエネルギー障壁の内部に閉じこめられていて、フェルミ・ディラック分布に従うエネルギー分布をしている。図2に示すように金属が0 Kの場合、伝導帯の底からフェルミエネルギー E_F に至る全てのエネルギー準位は自由電子で充たされており、金属の外に飛び出す電子は存在しない。金属が高温に加熱されると、電子が熱エネルギーを獲得して高エネルギー領域にまで裾を延ばしたエネルギー分布となり、真空準位以上のエネルギーを持つ電子は金属外の空間に飛び出す。これは熱電子放出とよばれ、その電流密度はリチャードソン・ダッシュマンの式、

$$J_R = (4\pi me k^2 T_m^2 / h^3) \exp(-e\phi / kT_m) \quad (1)$$

で与えられる。ここで、 m は電子の質量、 e は電子の電荷、 h はプランクの定数、 T_m は金属の温度である。また、 $e\phi = E_0 - E_F$ であり仕事関数と呼ばれる。これは、 E_F のエネルギーを持つ電子を金属の外部に取り出すには外部から $e\phi$ の仕事を与える必要があることを意味する。仕事関数は通常[eV]の単位で、 ϕ は[V]の単位で与えられる。(1)式からわかるように J_R は、 T_m が高いほど、 ϕ が低いほど大きくなる。タングステンのような耐熱性金属では高温まで加熱できるが、 $\phi \sim 4.5\text{V}$ と高いため $T \geq 2500\text{K}$ まで加熱しなければならない難点があるが、放電中のイオン衝撃に強い利点がある。一方、低仕事関数の材料として広く利用されている酸化物被覆陰極(BaSr)Oは $\phi = 1.0 \sim 1.5\text{V}$ であり、 $1000 \sim 1200\text{K}$ の温度で十分な熱電子放出が得られるがイオン衝撃には弱い。酸化物被覆陰極を作るには、Ni製のキャップの面上に(BaSrCa)CO₃を塗布して真空中で加熱分解し、最後に使用温度より高い温度で一時的に大きな放出電流を取り出して活性化し、次いで電流を次第に減少して枯化する。この陰極は低温で利用できる良さがある半面、一端空気に曝すと再度活性化が必要であるため、プラズマプロセスのような用途には不向きである。

なお、熱電子放出を利用する電極は加熱して使うため熱陰極と呼ばれる。

(b) 電界放出

図2の点線で示されるように、金属表面に 10^8 [V/m] 程度の強い電界を印加すると、金属内のフェルミ準位近くの電子に対するポテンシャル障壁の厚さは同図の一点鎖線のように薄くなり、およそ1 [nm] 程度となる。この程度の薄さになると、電子が量子力学的なトンネル効果によりポテンシャル障壁を透過して金属の外に出てくる確率が大きくなり、放電を維持するのに十分な電子放出が得られる。電界放出を利用すると電極は室温でも良く、しばしば冷陰極と呼ばれる。

電界放出による電流密度はファウラー・ノルドハイムの式で示され、

$$J_N = (e^3 F^2 / 8\pi h \phi) \exp(-8\pi\sqrt{2} m \phi^{3/2} / 3ehF) \quad (2)$$

で与えられる。ここで、 F は電極に加えられる電界である。

(c) 熱電界放出

直流放電中の陰極では、放電のために印加される電界のために実質的な仕事関数が図2に示されるように $\Delta\phi$ だけ低下し、電子放出が増加する(ショットキー効果と呼ばれる)。微小突起を有する多孔質熱陰極の場合には、そこに電界が集中して電界放出を起こすことが考えられる。冷陰極放電の場合でも放電中のイオンが陰極に勢い良く衝突し、その運動エネルギーによって陰極が加熱されるため熱電子放出が加わる。このように、放電中には熱電子放出と電界放出が同時に起きる場合があり、熱電界放出と呼ばれる。

(d) γ 作用

高エネルギーイオンが陰極に衝突すると陰極から電子が放出され、2次電子放出と呼ばれる。これは γ 作用とも呼ばれ、直流放電の維持に重要な働きをする。

4. 直流放電の形態

圧力0.1～10Torrの気体を封入した放電管の両端におかれた電極に直流電圧を印加すると、絶縁破壊を生じて放電が点灯する。放電開始電圧より幾分低い電圧で維持される放電は柔らかな光色

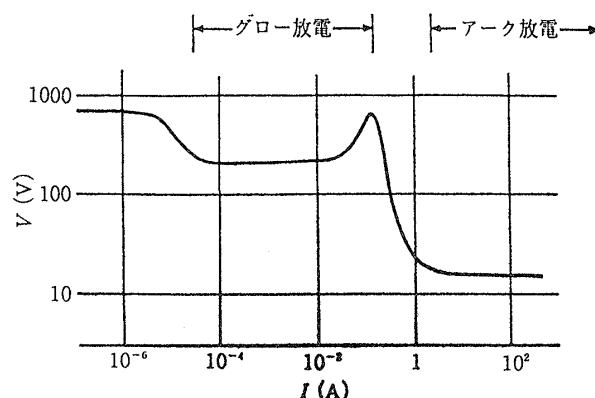


図3 グロー放電とアーク放電の放電維持電圧 V_d [V] と放電電流 I [A] の関係[4]。

の放射を行い、特徴ある発光構造を持つ。また、封入気体特有の色合いの光を放射する。この放電は柔らかな発光の様子からグロー放電と呼ばれる。放電電流を増加させると放電維持電圧が大きく低下し、グロー放電よりも荷電粒子の密度が高いアーク放電と呼ばれる放電形態に移行する。図3は両放電形態の移行過程を定性的に現した図である。

(a) グロー放電

グロー放電は図4に見られるように、陰極から陽極に向かって発光部と暗部が交互に現れる構造を持っている。放電電圧の大部分は同図の点線dの陰極側に集中して印加され、陰極降下部と呼ばれる領域が現れる。陰極から放出された電子は陰極降下電圧 V_c で加速され、気体原子・分子と衝

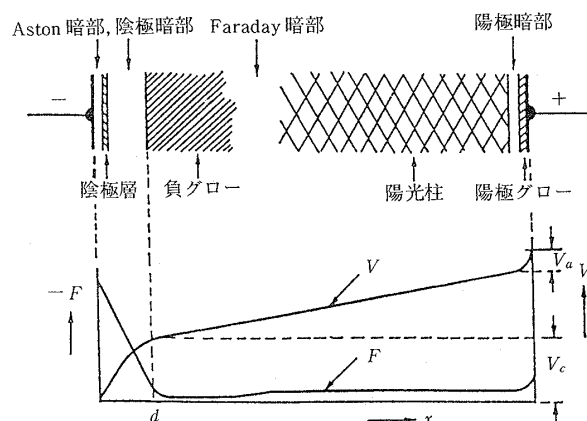


図4 グロー放電の発光状態と電位分布[5]。ここで、 V は電位、 F は電界、 V_c は陰極降下電圧。

突電離をして多数の電子とイオンを生成する。この電子は陽極側に進行するが、降下部に残されたイオンはこの付近の電位を持ち上げて陰極降下部を形成する。イオンは降下部で加速されて陰極に衝突し、 γ 作用により陰極からの電子の供給を増加させる。陰極層では加速された電子のエネルギーが気体原子を励起するのに最適なエネルギーとなっているため発光が強まるが、さらに加速されると却って原子の励起確率が低下するので発光が弱まり陰極暗部が形成される。負グローの領域では電子密度が増すとともに電界も急激に弱まり、電子のエネルギーが低下して再び原子の励起に適すようになり発光が顕著になる。さらに陽極側に進むと電子はエネルギーが低下しているため、イオンとの再結合が多くなり発光が弱まってファラデ暗部が形成される。その後続く陽光柱では電界が徐々に増大して電子が加速され、拡散損失を補う程度の衝突電離が起きている。陽光柱では電子とイオンの密度はほぼ等しくプラズマの状態にあり、実験用プラズマ、CVD プラズマあるいは分光用光源等広範囲に利用されている。

(b) アーク放電

放電電流を増加させていくと、流入するイオンの衝撃で陰極の温度が著しく上昇する。高融点金属を用いた陰極では熱電子放出が支配的になる温度にまで加熱出来る。この結果、多量の電子が陰極から供給されるので放電の維持が楽になり放電維持電圧がグロー放電の場合に比べて著しく低下する。また、電子やイオンの密度も高くなる。放電管内の電位分布はグロー放電と類似し、陽光柱のプラズマは光源や各種プラズマの実験に利用される。

(c) その他の直流放電 [6]

気体圧力が 10^{-3} Torr 以下と低い場合には電子の衝突電離が減って、安定な放電を得ることが困難になる。この場合でも電極構造や配置を工夫することにより実用的なプラズマを発生することが可能である。

PIG 放電は電極を図 5 のような配置とし、管軸方向に磁界を印加する。陰極から放出された電子は陰極と同電位のリング状陰極によって管軸方

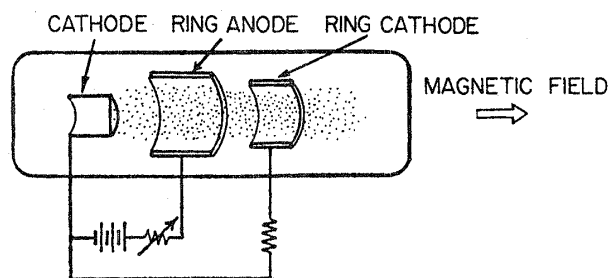


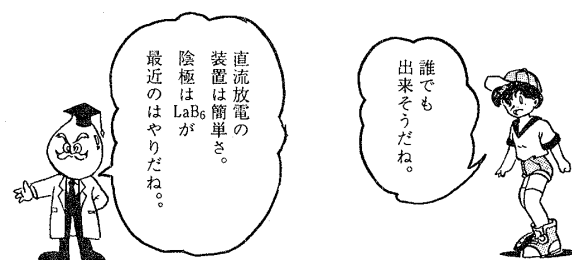
図 5 PIG 放電の電極配置。

向の運動を抑えられ、磁界を横切って陽極に進む。この結果電子は陽極に到達するまでに実質的に長い距離を進むことになり、電離衝突の確率が高まる。このため、低気圧でも $10^{13} [\text{cm}^{-3}]$ の高密度プラズマが得られる。

この他、拡散型プラズマ、ホロー陰極放電、TPD 型放電等種々のプラズマ発生法が用途に応じて考案され成果を上げている。

5. おわりに

直流放電は装置や設備が比較的簡単で経費も少なくてすみ、放電の機構を究明する上で便利な形式である。研究の歴史も長く、放電機構、電子放出機構、分光用光源、さらには近年脚光を浴びているプロセス用プラズマ等の様々な観点から研究が進められ、よく理解された放電形態である。プラズマ生成法を学ぶ場合、先ず直流放電を十分理解することが肝要である。本説では細部を詳細に説明することは出来なかったが、良書 [7] が多数出版されているので参照されたい。



画：浜 秀昭 (中部大学漫画研究会)

参考文献

- [1] 例えば, J. M. Meek & J. D. Craggs, *Electrical Breakdown of Gases* (Clarendon Press, Oxford, 1953)
- [2] S. C. Brown, *Basic Data of Plasma Physics*, 1966, 2nd ed. (MIT Press, Cambridge, 1967) p143
- [3] 柴田幸男: 電子管・超高周波デバイス (コロナ社) p2
- [4] 八田吉典: 気体放電 (近代科学者) p162
- [5] 小沼光晴: プラズマと成膜の基礎 (日刊工業新聞社) p55
- [6] 電気学会放電ハンドブック出版委員会: 放電ハンドブック (電気学会) p285
- [7] 例えば, A. von Engel, *Ionized Gases* (Clarendon Press, Oxford, 1965); S. C. Brown, *Introduction to Electrical Discharges in Gases* (John Wiley & Sons, Inc., NewYork-London-Sydney), 武田進: 気体放電の基礎 (東京電機大学出版局)