

CF₄, CH₄, Ar 혼합기체의 전자기동속도

The Drift Velocity of Electrons in CF₄, CH₄, Ar Mixtures Gas

김 상 남[†]
(Sang-Nam Kim)

Abstract - Drift Velocity of Electrons in pure CH₄, CF₄ and mixtures of CF₄ and Ar. Have been analyzed over a range of the reduced electric field strength between 0.1 and 350[Td] by the two-term approximation of the Boltzmann equation (BEq.) method and the Monte Carlo simulation (MCS). The results of the Boltzmann equation and the Monte Carlo simulation have been compared with the data presented by several workers. The deduced transport coefficients for electrons agree reasonably well with the experimental and simulation data obtained by Nakamura and Hayashi. The energy distribution function of electrons in CF₄-Ar mixtures shows the Maxwellian distribution for energy. That is, $f(e)$ has the symmetrical shape whose axis of symmetry is a most probably energy. The measured results and the calculated results have been compared each other.

Key Words : Drift Velocities, Monte Carlo Simulation(MCS), Boltzmann Equation(BEq)

1. 서 론

최근 새로운 산업 응용분야에서 방전 플라즈마 응용기술이 폭넓게 이용되고 있다. 특히 약전리 기체 방전 플라즈마 현상은 높은 에너지 밀도의 발생이 가능하게 하였으며, 제어핵 융합으로 미래의 에너지 자원 개발, 반도체 박막공정, 예칭, plasma display, 기체 플라즈마 CVD(Chemical Vapor Deposition), 기체 Laser 등의 새로운 가공법에 대한 연구가 활발히 진행되고 있다.

약전리 기체 방전 플라즈마 현상을 지배하는 전자 수송계수 특성에 대해 난수기술 등 다변수 문제를 정량적 수치해석과 확률적 요소를 포함하여 컴퓨터 시뮬레이션 및 실험적 방법으로 많은 연구가 이루어지고 있다.

전계 중에 존재하는 약전리 기체 플라즈마 중에서 전자의 이동에 대한 전자 수송계수 특성에 대한 정량적인 계산은 방전공간 내에서 나타나는 전체의 전자를 추적하여 전자에너지 분포함수와 전자군의 동향을 조사하고 이들 전자의 물리량을 가상적으로 샘플링(sampling)하며, 그들 하전입자의 운동을 컴퓨터로 추적하여 확률적으로 결정하는 것이다.

또한 이들 플라즈마를 정량적으로 생성하기 위한 기체의 종류, 혼합비율 그리고 기체압력 등의 결정에는 컴퓨터를 이용한 시뮬레이션 방법이 유용한 수단으로 이용되고 있다. 한편, 시뮬레이션에 의해 정량적인 값을 구하기 위해서는 플라즈마를 구성하는 기체와 전자와의 상호작용에 관한 운동(전자 충돌단면적)과 충돌과정에 의해 파생되는 여러 전자 수송계수에 대한 해석이 요구되고 있다[8, 9].

따라서 본 논문은 CF₄(Tetrafluoro Methane), CH₄ (Methane)

순수기체와 CF₄-Ar 혼합기체에서 전자의 이동속도를 볼츠만 방정식의 Backward prolongation법과 Monte Carlo Simulation 법에 의해 E/N=0.1~300 Td (E:전계, N:기체분자 수밀도, 1 Td=1×10⁻¹⁷V·cm, 0°C, 1 Torr) P=0.1, 0.5, 1.0 Torr, 온도: 300K 범위에서 계산함으로써 이들 기체들이 가지고 있는 기초적인 물성을 해석하여 그 응용성을 검토하는 것을 목적으로 한다.

2. 해석 방법

몬테칼로법은 2차 대전기간 동안에 원자탄 개발을 위한 중성자 수송에 관련된 문제를 해결하기 위한 목적으로 많은 과학자들에 의해 연구, 발전되어왔다. 다양한 응용분야에서의 몬테칼로법 중에서 기체중의 전자의 거동에 관한 몬테칼로 시뮬레이션(MCS : Monte Carlo simulation)으로는 H. Itoh, M. Musha 및 W. R. L Thomas에 의해서 최초의 연구가 시작되었다[9, 10].

MCS은 난수(Random Number)를 이용하여 충돌의 종류, 산란후의 방향 및 비행시간 등을 결정하면서 전자의 운동을 반복 추적한다. 또한 전자군의 성질을 조사하기 위한 몬테칼로법은 전자계 내의 전자 운동 상태와 분자의 충돌, 산란 및 확률을 고려하여 전자, 이온의 상태량을 추적하는 것을 기본으로 하여 입자를 확률 현상의 난수로 모의하는 방법을 말한다. 사용하는 난수는 컴퓨터에서 발생하는 [0~1]사이의 의사난수(Pseudo random number)이다[11].

MCS은 확률론적인 기법을 이용하기 때문에 얻어진 결과로부터 통계적인 분산이 생기는 단점이 있다. 이 때문에 신뢰되는 파라미터를 구하기 위해서는 충분한 샘플수를 확보할 필요가 있다.

전자군에 대한 관측방법으로는 TOF, PT, SST 등이 있다. 몬테칼로 시뮬레이션에 있어서도 data 샘플링을 이들 관측법

[†] 교신저자, 시니어회원 : 인천대학교 전기공학과 교수·공박
E-mail : sn7332@incheon.ac.kr

접수일자 : 2011년 5월 31일
최종완료 : 2011년 7월 21일

에 의해서 행한다. 3종의 관측법 중에 PT, SST에서는 계산을 행한 전자수가 그대로 샘플수로 생성되어 얻어지지만 TOF에서는 위치와 시간을 같이 지정하기 때문에 샘플수는 작게된다. 더욱이 에너지 분포를 구하는 경우 샘플수는 점점 작게되고 통계적 변동을 많이 포함한 결과가 되기 쉽다. 그것을 방지하기 위해 전자수를 많게 계산하는데 이에 따라 계산 시간도 증가한다[12, 13].

볼츠만 방정식은 MCS와는 다르게 개개의 전자를 추적하지 않고 처음부터 다수의 입자를 포함하는 전자류를 취급하기 위하여 충돌의 확률적 성질을 기초로 하여, 전자군의 연속적인 예측이 가능하고 계산시간이 비교적 짧아 각종 전자군 파라미터를 산출하는데 일반적으로 사용되어 왔다.

본 논문에서는 볼츠만 방정식에 의한 전리, 부착 및 실효 전리계수의 수치해석은 Philip E. Luft의 Backward prolongation계산법을 이용하였다[14]. 또한 전자가 음극에서부터 양극에 도달할 때까지 SPARC WORKSTATION(SS-20)으로 반복 추적하여 계산하였고 그림2-1에 본 시뮬레이션 전체의 개략적인 과정을 전자 시뮬레이션 흐름도로 나타내었다.

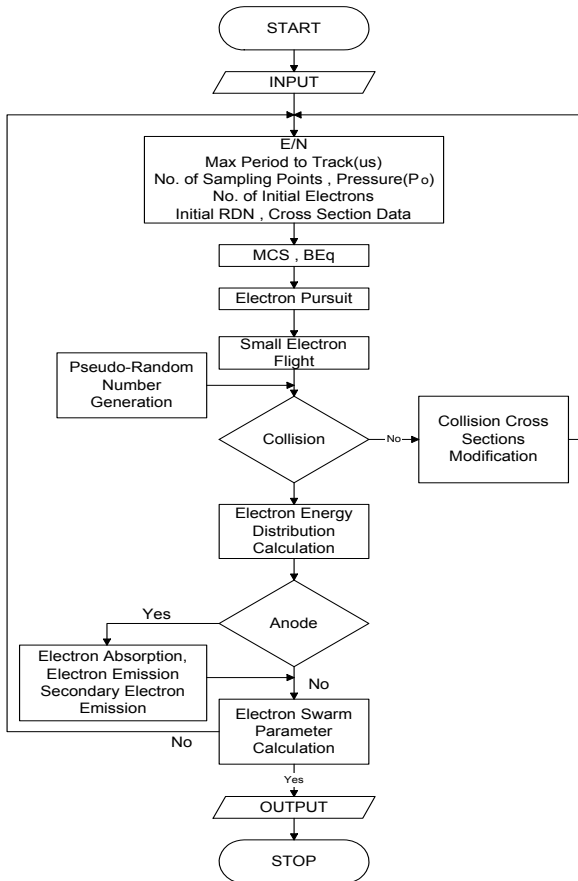


그림 2.1 전자 시뮬레이션 흐름도
Fig. 2.1 Flowchart of the electron simulation

3. 전자충돌 단면적

3.1 CF₄ 기체에서 전자의 충돌단면적

본 연구에 이용한 CF₄의 전자충돌단면적은 운동량 변환

단면적(Q_m), 진동 여기 단면적(Q_{v1}, Q_{v2}), 부착 단면적(Q_a), 여기 단면적(Q_{ex}), 해리단면적(Q_d) 및 전리단면적(Q_i)으로 구성되어 있다.

이 CF₄의 전자 충돌 단면적은 운동량 변환 단면적(Q_m)의 0.1~0.8 eV범위에서 Ramsauer Townsend Minimum (RTM) 을 가지며 이 지점에 큰 진동 여기단면적(Q_{v1}, Q_{v2})이 존재하기 때문에 단면적 결정에 어려움이 있다. 또한 전자 여기(Q_{ex})의 Threshold에너지 부근에 비교적 큰 부착단면적을 가지고 있으며, 이것이 전자부성특성을 나타내는 원인이 된다. 그리고 해리 단면적(Q_d)과 전리단면적(Q_i)은 그림 3.1과 같은 Nakamura[15]의 실험치를 이용하였다

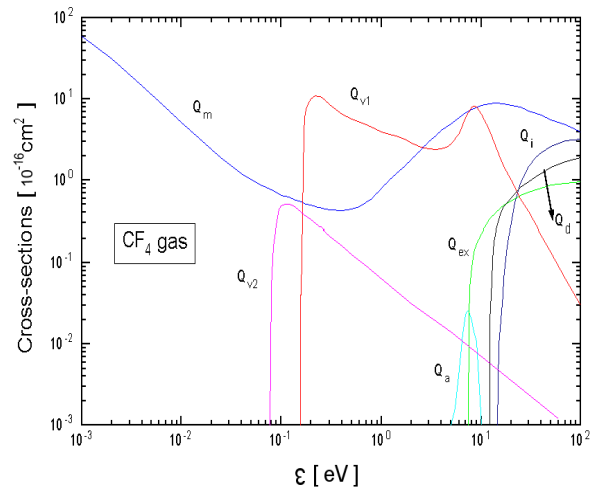


그림 3.1 CF₄ 기체에서 전자의 충돌단면적
Fig. 3.1 Collision cross sections for electrons in CF₄

3.2 CH₄ 기체에서 전자의 충돌단면적

그림 3.2는 CH₄ 기체의 충돌단면적을 나타낸다. 입자간의 상호충돌작용으로 나타난 기체분자의 운동량 변환 단면적(Q_m), 진동 여기 단면적(Q_{v13}, Q_{v24}), 전리 단면적(Q_i), 전자 부착 단면적(Q_a), 해리 단면적(Q_d) 및 여기단면적(Q_{ex})이 Crompton, Kitamori, Kline등에 의한 전자 Beam 실험값으로 구성되어있다[16, 17, 18].

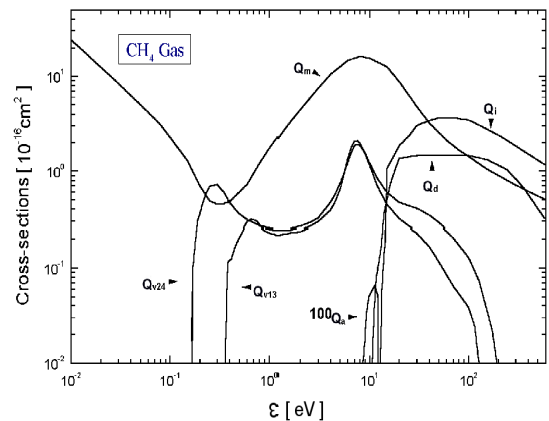


그림 3.2 CH₄ 기체에서 전자의 충돌단면적
Fig. 3.2 Collision cross sections for electrons in CH₄

3.3 Ar 기체에서 전자의 충돌단면적

시뮬레이션에서 그림 3.3의 전자충돌 단면적을 운동량 변환 단면적(Q_m), 여기단면적(Q_{ex}), 전리단면적(Q_i)으로 나타내었다[19].

이 Ar의 전자 충돌 단면적은 저에너지 영역($0 \sim 0.23\text{eV}$)에서 Bell과 Scott의 계산 값을 이용하였고 전자에너지 $0.136 \sim 54.4 \text{ eV}$ 영역의 범위에서는 Arati Dasgupta의 실측값을, $60 \sim 150 \text{ eV}$ 범위에서는 Fon의 측정값을 이용하였다[20, 21, 22].

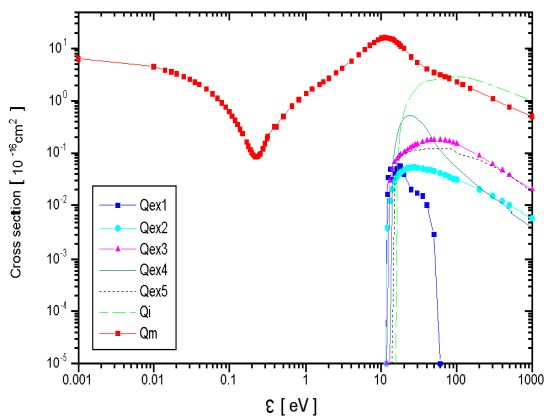


그림 3.3 Ar 기체에서 전자의 충돌단면적
Fig. 3.3 Collision cross sections for electrons in Ar

4. 결과 및 고찰

4.1 CF₄ 기체에서 전자의 이동속도

순수 CF₄ 기체의 전자 수송계수에 대해 몬테칼로 시뮬레이션과 볼츠만 수치해석을 통하여 고찰하였다.

그림 4.1은 전자기동속도에 대해 $E/N=1 \sim 300 \text{ Td}$ 범위에서 Nakamura, Hayashi의 실험값과 MCS, BEq에 의한 결과를 비교한 것이다.

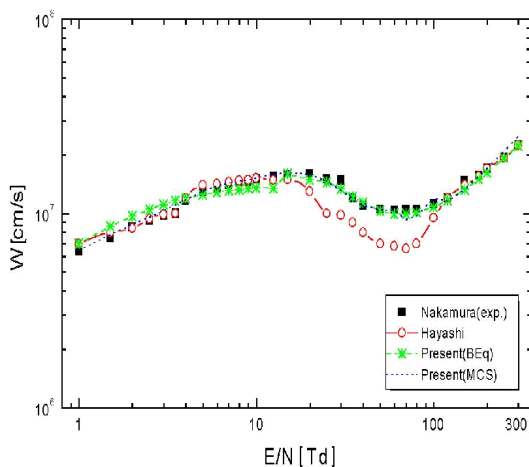


그림 4.1 CF₄ 기체에서 전자의 이동속도
Fig. 4.1 The drift velocity of electrons in CF₄

CF₄ 기체의 운동량변환단면적은 $0.1 \sim 0.8 \text{ eV}$ 부근에 넓은

RTM과 여기에 커다란 진동 여기단면적이 존재하므로 진동 여기충돌에 의해서 낮은 에너지대의 전자가 많기 때문에 전자에너지의 커다란 순환이 발생하고 완화시간의 감소효과로 $E/N=30 \sim 100 \text{ Td}$ 영역에서 전자기동속도가 증가하다가 감소하는 부구배 (NDC : Negative Differential Conductivity)의 특성을 나타내게 된다.

여기서 NDC의 특성은 아직 정확히 파악되지는 않았지만 산본(山本), 생전(生田)[24]이 모델단면적을 구성하여 NDC의 특성을 연구하던 중에 a) Q_v 의 값이 높은 경우, b) Q_v 의 높은 에너지측의 Threshold가 낮고 급하게 떨어지는 경우, c) Q_m 의 구배가 큰 경우 NDC는 현저하다고 발표하였다. 본 연구에서 MCS와 BEq로 계산된 이동속도는 거의 일치하였고 $E/N=20 \sim 100 \text{ Td}$ 범위에서의 실험치는 큰 차이가 나타났다. 이것은 Nakamura와 Hayashi의 단면적중 Q_m 의 차이 때문이며 Hayashi의 Q_m 이 더 깊은 RTM을 가지고 있기 때문이다 [24, 25]. 또한 CF₄ 기체가 갖는 큰 진동 여기단면적과 운동량 변환단면적의 작용으로 나타나는 에너지분포의 비등방성에 의한 2항 근사해석의 오차와 전자부성특성이 현저한 영역에서 전자기동속도의 측정방법과 해석의 문제로 인하여 오차가 발생된다고 생각된다.

4.2 CH₄ 기체에서 전자의 이동속도

그림 4.2는 전자기동속도에 대해 $E/N=0.1 \sim 300 \text{ Td}$, $P=1 \text{ Torr}$ 의 조건에서 Ohmori, Hunter와 Carter의 실험치와 이론치를 비교 검토한 것이다. CH₄ 기체의 운동량 변환단면적은 $0.2 \sim 0.5 \text{ eV}$ 부근의 RTM과 동일한 에너지 영역에서 진동여기단면적을 지니므로 진동여기 충돌에 의하여 낮은 에너지대의 전자가 많기 때문에 전자에너지의 순환이 발생하며, 완화시간의 감소효과로 $P=1 \text{ Torr}$ 에서 $E/N=3 \sim 40 \text{ Td}$ 의 영역에서 이동속도는 상승하다 감소하는 부구배 특성을 나타내었다.

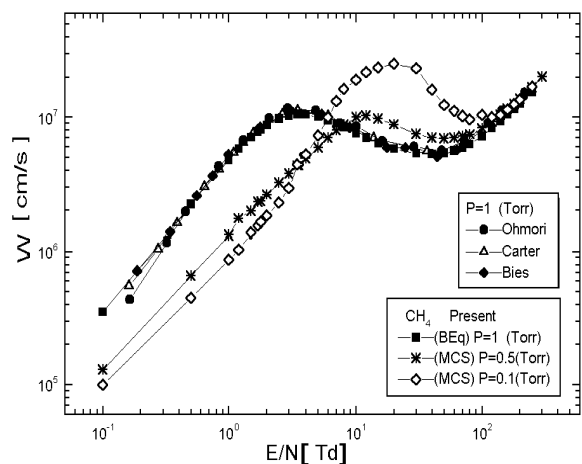


그림 4.2 CH₄ 기체에서 전자의 이동속도
Fig. 4.2 The drift velocity of electrons in CH₄

본 연구에서 압력($P=1 \text{ Torr}$)의 경우 MCS와 BEq로 계산된 이동속도는 거의 일치하는 경향이 있다. 그러나 $E/N=0.1 \sim 1 \text{ Td}$ 의 영역에서는 CH₄ 기체가 갖는 큰 진동여기단면적과 운동량변환단면적의 작용으로 나타나는 에너지분포의 비등방성에 의한 2항 근사 해석의 오차와 전자부성특성이 이동

속도의 감소로 생각된다. 또한 Ohmori와 Carter의 실험치와 MCS와 BEq의 Data를 비교하여도 이동속도의 특성곡선이 잘 일치됨을 보여준다. 한편 각각의 압력에 대한 이동속도의 특성을 보면 압력이 P=0.5 Torr 낮은 경우 최대값이 압력 P=1 Torr과 거의 일치하지만 압력 P=0.1 Torr의 경우 극대값이 둘의 경우보다 크을 알 수 있다.

4.3 Ar 기체에서 전자의 이동속도

그림 4.3은 순수 Ar 기체의 E/N=85~566 Td의 범위에서 전하이동속도를 몬테칼로법에 의하여 계산하고 그 결과를 Parker와 Lowke[23]의 측정치와 볼츠만 방정식의 값과 비교하여 나타낸 것이다.

전하이동속도는 E/N의 증가에 대해서 거의 선형적으로 증가하고 이론값과 측정값이 일치하였다. 높은 E/N영역의 전자속도 분포함수에는 비등방성이 강하여 전계로 인한 전자의 속도 성분은 증가하였다. 이는 전자에너지가 10 [eV]이상에서는 Ar원자의 비탄성 충돌작용으로 에너지 분포함수의 형태가 낮은 에너지 쪽으로 증가분이 크게 되어 탄성산란특성의 전방산란영향이 크게 작용하여 이동속도는 증가하기 때문이라고 사료된다.

CF₄ 분자는 그 구조가 전자충돌단면적에 있어서 CH₄ 분자와 유사하다. 이와 같은 기체 중에 있는 전자수송계수를 비교하는 것은 의미가 깊고 또, 이로부터 전자충돌단면적에 대한 특성을 알 수 있다[24].

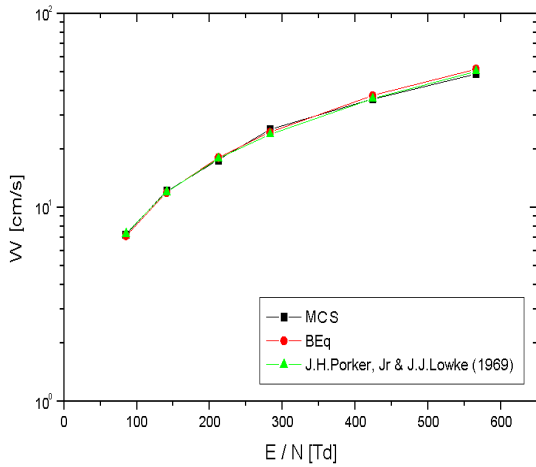


그림 4.3 Ar 기체에서 전자의 이동속도
Fig. 4.3 The drift velocity of electron in Ar

4.4 CF₄-CH₄ 혼합기체에서 전자의 이동속도

그림 4.4에서는 CH₄와 CF₄에 대한 전자의 이동속도를 비교하여 나타냈다. 위 그림에서 전하이동속도는 앞에서도 설명한 바와 같이 NDC 특성을 나타낸다. 그러나 CF₄에 있어서는 15 < E/N < 60 Td의 비교적 좁은 범위에 한정되어 이동속도의 감소도 약 40%인데 대해 CH₄에 있어서는 NDC 특성은 4 < E/N < 40 Td의 넓은 범위에 걸쳐 그 감소도 약 50%에 달한다. 그러나 양 기체는 약 E/N = 50 Td 부근에서 E/N 증가와 더불어 다시 이동속도가 증대하기 시작한다. CH₄ 기체 자신이 다른 희기체와 통상기체에 비해 높은 전하이동속도를 주는 기체이지만, CF₄는 더욱 높은 전자 이동속도를 주며 또한

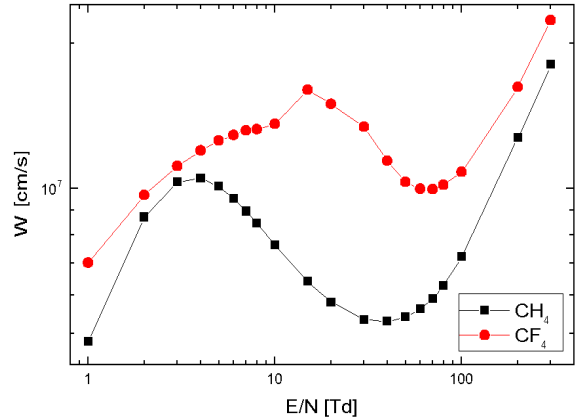


그림 4.4 CF₄와 CH₄ 기체에서 전자의 이동속도
Fig. 4.4 Drift velocity of electrons in CF₄ and CH₄ 전자 이동속도의 E/N 의존성이 완만하다는 것을 그림 4.5에서 알 수 있다. 또 높은 E/N에서 양기체의 이동속도가 서로 접근해 가고 있음을 보여준다.

4.5 CF₄-Ar 혼합기체에서 전자의 이동속도

그림 4.5의 전하이동속도는 E/N=10 Td까지 CF₄(0.1%)-Ar(99.9%)와 CF₄(5%)-Ar(95%)를 Hayashi와 Nakamura의 값과 비교한 것이다.

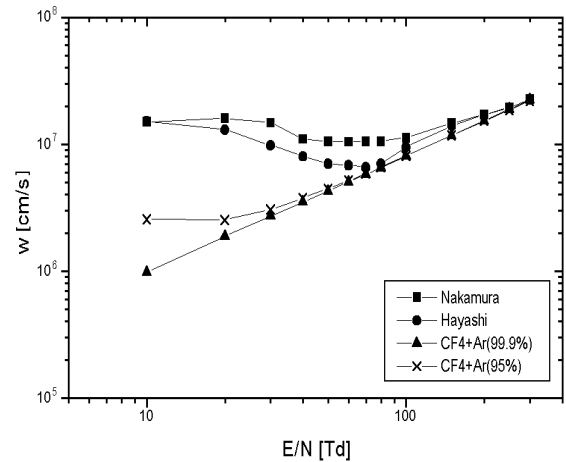


그림 4.5 CF₄와 Ar 기체에서 전자의 이동속도
Fig. 4.5 Drift velocity of electrons in CF₄ and Ar

이 그림에서 Hayashi와 Nakamura가 측정된 순수 CF₄ 기체는 운동량변환단면적 0.1~0.8 eV부근에서 넓은 RTM과 큰 진동여기단면적이 존재한다. 혼합기체의 NDC에서 적은 혼합비율의 기체(CF₄또는 CH₄)의 Q_m의 영향은 거의 없다. 따라서 Ar의 RTM을 갖는 Q_m과 CF₄ 또는 CH₄의 낮은 에너지 영역의 Q_v등에 의해 혼합기체의 전하이동속도와 NDL에서 NDC 현상이 보여진다.

CF₄-Ar혼합기체에서는 낮은 E/N에서 CF₄의 운동량 변환 단면적이 Ar에 비해 크기 때문에 그 혼합비가 5%인 혼합기체는 0.1% 혼합된 결과보다 전하이동속도의 값이 더 높지만 E/N값이 점점 증가함에 따라 양 기체의 운동량 변환단면적 크기가 커다란 차이를 보이지 않게 되어 전하이동속도의 값

은 혼합비에 상관없이 일치되어가는 것을 볼 수 있다[25].

5. 결 론

본 논문에서는 2항 근사의 볼츠만 방정식과 몬테카를로법에 의하여 순수 CH₄ 및 Ar에 미량의 CF₄를 혼합한 기체 중에서 전자이동속도를 시뮬레이션에 의해 정량적으로 계산하였으며, 일반적으로 증가한 반면, CF₄-CH₄ 혼합가스에서만 초기에서는 증가하다가 10-80Td 에서는 감소하다가 그 이상에서는 전자 이동속도가 증가하는 경향이 나타났다. 따라서 본 연구에 이용한 충돌단면적(운동량변환 단면적, 여기 단면적, 진동 여기 단면적 및 전리·부착 단면적 등)의 타당성이 밝혀졌다.

이처럼 컴퓨터를 이용한 시뮬레이션으로 MCS법과 볼츠만법에 의한 결과 값은 실험값과 거의 일치하는 것으로 최근에 공학적으로 유효한 수단이 되고 있으며 우수한 프로그램이라는 것이 입증됨으로써 실험에 드는 비용 및 시간을 크게 절약할 수 있고 CF₄ 플라즈마를 이용한 기관가공 기술, 반도체의 박막 공정, 플라즈마 에칭기술, Plasma CVD의 활용 및 기초적인 data를 얻는데 크게 기여할 것으로 판단되어진다.

참 고 문 헌

- [1] Flamm D. L, "Plasma Processing of Semiconductors" Williams P F, NATO ASI series, pp.1~22. 1997.
- [2] 奥田孝美, "氣體プラズ마現象", コロナ社, pp. 21-33, 1975.
- [3] 山本賢三, 奥田孝美, "電離氣體", コロナ사, pp. 161-197, 1977.
- [4] 武田進著, "プラズ마의基礎", 朝倉書店, pp. 17-58, 1976.
- [5] 森正武, "Fortran 77 數値計算 프로그래밍" (岩波書店), pp. 41-44, 1995.
- [6] 몬테카를로법과 시뮬레이션(培風館), 1989.
- [7] 市川行和, 高柳和夫, 島材勳, "衝突의理論(上 下)", 吉岡書店, pp. 192, 1975.
- [8] 高柳和夫, "電子, 原子, 分子의衝突", 培風館, pp. 51-69, 1978.
- [9] H. Itoh, T. Matsumura, K. Satoh, Y. Nakao and H. Tagashira, "Development of electrons swarms in CF₄", Proc. 21st int. Conf. on Phenomena in Ionized Gases, (ICPIG) (Bochum : Germany) 1, pp. 245-6, 1993.
- [10] R. W. L. Thomas, and W. R. L. Thomas, "Monte Carlo simulation of electrical discharge in gases", J.Phys. B. Vol. 2, pp.562~570, 1969.
- [11] S. A. J. Al-Amin and J. Lucas, "Electron swarm parameters in oxygen and methane", J. Phys. D:Appl. 18. pp. 1781-1794, 1985.
- [12] Huxley L G H and Crompton R W "Diffusion and Drift of Electrons in gases", Wiley, 1974
- [13] Y Ohmori, K Kitamori, H Tagashira " Boltzmann equation analysis of electron swarm behavior In Methane" The Institute of Physics. 437-455 1986
- [14] Philip E. Luft. "Description of a backward prolongation program for computing transport coefficients" JILA Information center report, Vol. No. 14. 1975.
- [15] Y. Nakamura, M. Kurachi "Electron Transport Parameters in Argon and its momentum transfer cross section" J.Phys.21, pp.718-723, 1988
- [16] Y. Ohmori, K. Kitamori, M Shimozuma, and H. Tagashira, "Boltzmann equation analysis of electron swarm behaviour in methane", J. Phys. D. 19, pp.437-55, 1986.
- [17] L. G. H. Huxley, R. W. Crompton. "The Diffusion and Drift of Electrons in Gases" John Wiley and Sons. Inc 1974
- [18] L. E. Kline and W. E. Bies, "Measurements of swarm parameters and derived electron collision cross sections in methane", J. Appl. Phys. 65. pp. 3311-3323. 1989.
- [19] K. L. Bell, N. S. Scott and M. A. Lennon, "The Scattering of low-energy electrons by Argon atoms" J. Phys. B: At. Mol. Phys. 17, pp. 4757-4765, 1984
- [20] K. L. Bell, N. S. Scott and M. A. Lennon, "The Scattering of low-energy electrons by Argon atoms" J. Phys. B: At. Mol. Phys. 17, pp. 4757-4765, 1984
- [21] Arati Dasgupta and A. K. Bhatia, "Scattering of electrons from Argon atoms" Phys. Rev. A. Vol.32, No. 6, pp.3335-3341, 1985
- [22] W. C. Fon, K. A. Berrington, P. G. Burke, "The elastic Scattering of electrons from inert gases:"
- [23] J. H. Parker and I. J. Lowke "Theory of Electron Diffusion Parallel to Electric Fields, II.Application to real Gases" Phys. Rev, Vol.181, No. 1, pp. 302-311, 1969
- [24] 山本, 生田, "CF₄카스의電子衝突斷面積と輸送係數", 電氣學會放電研究會資料, ED-91-70, pp.11-20, 1991.
- [25] 小田信一, 駒田正人, 中村義春, "CF₄-ArおよびCF₄-Ar混合氣體中の電子輸送係數の測定", 電氣學會放電研究會資料, 中村義春, ED-92-145, 1992

저 자 소 개



김 상 남 (金 相 南)

1951년 3월 21일생. 1978년 숭실대학교 전기공학과 졸업. 1980년 숭실대학교 대학원 졸업(석사), 2001년 동국대학교 대학원 졸업(공학박), 1978년~2009년 시립 인천전문대학 전기과 교수, 2010년~인천대학교 전기공학과 교수, 본 학회 이사, 본 학회 산업전기위원회 회장

Tel : 032-835-8439

Fax : 032-835-4922

E-mail : sn7332@incheon.ac.kr

sn7332@hanmail.net