

MCS - BEq에 의한 CH₄기체에서 전자에너지 분포함수

Electron Energy Distribution function in CH₄ by MCS - BEq

김 상 남[†]
(Sang-Nam Kim)

Abstract - This paper describes the information for quantitative simulation of weakly ionized plasma. We must grasp the meaning of the plasma state condition to utilize engineering application and to understand materials of plasma state. Using quantitative simulations of weakly ionized plasma, we can analyze gas characteristic. In this paper, the electron transport characteristic in CH₄ has been analysed over the E/N range 0.1~300[Td], at the 300[K] by the two term approximation Boltzmann equation method and Monte Carlo Simulation. Boltzmann equation method has also been used to predict swarm parameter using the same cross sections as input. The behavior of electron has been calculated to give swarm parameter for the electron energy distribution function has been analysed in CH₄ at E/N=10, 100 for a case of the equilibrium region in the mean energy. A set of electron collision cross section has been assembled and used in Monte Carlo simulation to predict values of swarm parameters. The result of Boltzmann equation and Monte Carlo Simulation has been compared with experimental data by Ohmori, Lucas and Carter. The swarm parameter from the swarm study are expected to sever as a critical test of current theories of low energy scattering by atoms and molecules.

Key Words : Distribution function, Monte Carlo simulation(MCS), Boltzmann equation(BEq)

1. 서 론

플라즈마 여기 반응을 응용하는 플라즈마 프로세싱은 플라즈마 CVD(Chemical Vapor Deposition), 플라즈마 에칭(Etching), 반응성 이온 에칭, 플라즈마 증합, 플라즈마 산화·질화, 탄소피막 생성 등 광범위한 연구가 행하여지고 있으며 이를 이용한 반도체 소자, 공구코팅, 광학부품의 코팅 등 새로운 응용분야가 개척되고 있다[1]. 특히 공정의 미세화, 저온화의 필요성 때문에 플라즈마 공정이 종래의 공정을 대체하고 있으며 경우에 따라서는 플라즈마 만이 제공할 수 있는 물질이나 환경을 이용하기 위한 응용분야가 점점 더 확대되어 가고 있다[2].

본 연구에서는 전자의 비평형상태에서 CH₄가스의 충돌단면적(q_m, q_v, q_a, q_i, q_e 등)을 Kline[3], Kitamori[4] 등이 실험을 통해 결정된 값을 이용하여 E/N [Td] : 0.1~300(E:전계의 세기, N : 기체분자수밀도, 1[Td]= 1×10^{-17} V·cm², N= 3.5353×10^{16} cm⁻³, 0℃ 1Torr), P[Torr]=0.1, 0.5, 1 (1[Torr]= 1/273 atm), 온도[K] : 300의 범위와 조건을 정하여 비등방산란을 고려한 몬테칼로 시뮬레이션(이하 MCS)과 볼츠만 방정식(이하 BEq)의 Backward Prolongation법에 의하여 전자의 평균에너지 및 전자에너지분포함수 등의 전자수송계수를 계산하였다. 이러한 계산의 결과로부터 전자수송계수를 Crompton과 Ali등의 실험값과 계산값을 비교 검토하여 MCS와 BEq에 이용된 전자충돌단면적의 타당성을

입증하였다.

전력사용량과 발전량의 증대에 따라 전력기기들의 대용량화 초고압 화에 따라 절연문제의 연구가 절실함에 따라 이러한 계산과 검토에 의해 산출된 전자수송계수는 전자와 원자, 분자들 사이의 상호작용에 의한 저 에너지 영역의 전자산란의 중요한 자료로서 활용이 기대되어 진다.

2. 해석방법

2.1 몬테칼로 시뮬레이션

모나코의 카지노 게임도시인 Monte Carlo에서 이름이 유래된 MCS은 확률분포에 있어서 난수 선택에 기초한 실험적 수학의 한 분야로 불규칙적인 운동을 모델화 한 기법으로 매우 다양한 문제를 전자계산기에 발생시켜 Random한 실험결과를 해석하는데 유용한 수학적 모의 방법이다.[3]

MCS은 2차 대전기간 동안에 원자탄 개발을 위한 중성자수송에 관련된 문제를 해결하기 위한 목적으로 많은 과학자들에 의해 연구, 발전되어왔다. 다양한 응용분야에서의 MCS 중에서 기체중의 전자의 거동에 관한 MCS는 H. Itoh, M. Musha 및 R. W. L. Thomas, W. R. L. Thomas 에 의해서 최초의 연구가 시작되었다[5]~[9].

MCS은 난수를 이용하여 충돌의 종류, 산란후의 방향 및 비행시간 등을 결정하면서 전자의 운동을 반복 추적한다. 또한 전자군의 성질을 조사하기 위한 몬테칼로 법은 전자계내의 전자 운동 상태와 분자의 충돌 산란 확률을 고려하여 전자, 이온의 상태량을 추적하는 것을 기본으로 하여 입자를 확률 현상의 난수로 모의하는 방법을 말한다. 사용하는 난수는 컴퓨터에서 발생하는 [0~1]사이의 의사난수이다.

[†] 교신저자, 시니어회원 : 인천대학교 전기공학과 교수·공박

E-mail : sn7332@incheon.ac.kr

접수일자 : 2013년 1월 6일

최종완료 : 2013년 2월 23일

MCS은 우발현상의 경과로 나타나는 다수의 난수를 사용하여 수치적, 모형적으로 실현시켜 관측함으로써 문제의 근사해를 얻는 방법이다. 원자로부터 중성자의 차폐 효과 (shielding effect), 표본 분포 등의 문제를 이 방법으로 사용하면 간단하게 처리 할 수 있고 직관적으로 이해 할 수 있는 장점이 있다[7].

본 연구에서는 방전공간내의 전자군의 성질을 해석하기 위해 다수의 난수를 이용하여 전자계산기 내부에서 발생한다의사난수를 반복 계산하여 실험결과를 해석하는 것으로 본 연구의 기본이론은 기체방전 시뮬레이션을 이용하여 각종 파라미터를 전자의 평균에너지와 전자의 위치 및 시간의 함수로서 추적하였다[5]. 그리고 전자사태에서 나타나는 개개의 전자를 추적하여 방전의 파라미터의 동향을 조사하였다.

전자의 물리량을 가상적으로 샘플링하고 하전입자의 운동을 분석하여 전자군의 파라미터 값을 확률적으로 결정하는 것이다. 전계가 존재하는 공간의 방전 메카니즘에 있어서 전자는 전계에 의해서 높은 에너지를 갖게 되어 전자에너지가 불평형상태가 되므로 전자에너지분포를 추정하기는 매우 어렵다. 따라서 이러한 불평형 상태에서 전자에너지분포를 산출할 수 있는 MCS는 매우 유용하다.

기체방전의 해석에 이용되는 MCS는 컴퓨터에서 발생된 다수의 난수를 이용하여 대상을 확률적으로 해석하는 방법이다. 전자군의 수송특성을 해석하는 방법은 전계가 존재하는 방전공간에서 개개의 전자운동을 계산하는 기법과 얻어진 데이터에서 필요한 형식으로 적당한 샘플링을 행하여 전자군의 특성을 계산하는 기법으로 구성된다.

2.2 볼츠만 시뮬레이션

본 논문에서는 볼츠만 방정식을 이용한 수치해석기법을 사용하여 입력 Data로 기체의 운동량 변환단면적, 전리 단면적, 부착 단면적등을 이용하여 기체의 전자이동속도, 확산 계수, 전리계수, 부착계수, 실효전리계수와 실효전리계수 값을 이용한 임계 E/N의 값을 구할 수 있다.

볼츠만 시뮬레이션은 각각의 E/N에 대하여 분포함수의 최대 에너지 값 (ϵ_{max})을 찾아내서 그 ϵ_{max} 값을 3,000등분으로 분할하고 각 등분마다 분포함수를 산출하여 전자에너지 분포함수를 구하고 이 분포함수로부터 각종 수송계수를 산출해낸다.

그림 1은 본 논문에서 사용된 볼츠만 방정식 수치해석기법에 대한 Flow Chart를 나타내고 있다.

위 Flow chart의 내용은

- (1) 실험과 각종 참고문헌에서 참조한 충돌 단면적을 입력하고 loop 반복 횟수를 결정한다.
- (2) 전리 충돌항의 제 1항과 탄성 충돌항의 제 1항을 계산한다.
- (3) 비탄성 제 2충돌 항은 첫 번째 loop에서 낮은 에너지 분포함수로 계산하고 두 번째 loop 이후부터 계산한다.
- (4) $F(\epsilon)$ 에 의해 $D(\epsilon)$ 을 계산한다.
- (5) 수치해석기법에 의해 $F(\epsilon)$ 을 계산한다.
- (6) 구해진 에너지 분포함수를 $\int_0^{\infty} \epsilon^{1/2} F(\epsilon) d\epsilon = 1$ 에 의해 정규화 한다.

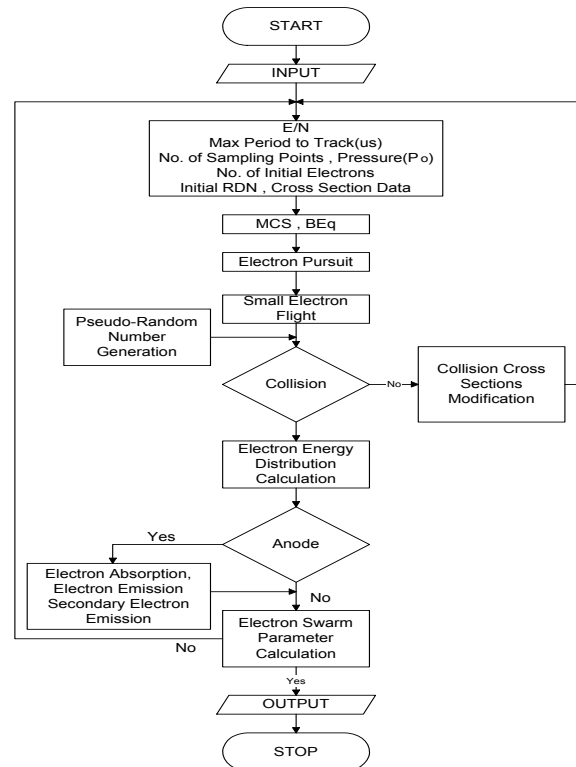


그림 1 볼츠만 시뮬레이션의 플로우차트
Fig. 1 Flowchart of Boltzmann equation simulation

(7) 구해진 충돌 단면적 Q 값과 반복 loop에서의 Q 값을 비교하여 그 차이가 주어진 조건에 합당한가를 판단한다.

(8) 확정된 $F(\epsilon)$ 값을 이용하여 각종 전자수송계수를 계산한다.

3. 전자충돌 단면적

충돌단면적은 전자의 거시적 특성을 이해하는데 기초적 자료로서 중요하다. 가스절연재료 및 비평형 플라즈마 응용 기술(광원, 레이저, 박막에칭, 방전화학, 환경보전, 정전기, 방사선검출기 등)에 이르기까지 각각의 경우에 필요한 가스의 종류, 상태조건(E/N, 가스밀도, 여기조건 등)에 관계되는 여러 가지 전자특성에 관한 정보를 알 수 있다. 절연가스로 사용되는 경우는 여러 단면적중에 전리단면적(q_i)과 부착단면적(q_a)이 중요하며 에칭가스로는 여기단면적(q_{ex})과 해리단면적(q_d)이 중요하다.

인간한 기체분자에 대한 전자의 충돌 단면적은 전자에너지의 영향을 받는다. 그러므로 기체분자의 여기, 해리, 이온화 등의 반응을 여기단면적, 해리단면적, 이온화단면적 등으로 나타내며 전충돌 단면적은 개개의 반응과정의 합으로 표현한다. 입자간의 상호충돌작용으로 나타난 기체분자의 운동량 변환단면적(q_m), 진동여기단면적(q_{v13}, q_{v24}), 전리단면적(q_i), 전자부착단면적(q_a), 해리단면적(q_d) 및 여기단면적(q_{ex}) 등이 있으며 본 논문에서 사용한 운동량변환단면적은 Crompton[10], Kitamori [4]과 Kline[3] 등에 의한 전자 Beam 실험값으로 구성되었다.

운동량변환단면적 q_m 은 탄성충돌을 위한 것이 아니라 비탄성 충돌을 위한 운동량 변환단면적으로 전체적인 운동량 변환단면적을 나타낸다. 메탄분자는 전자군 상태에서 9가지의 진동모드를 가지고 있다. 하지만 이것들 중 4가지만 다른 에너지를 가지고 있다. 4가지 상태의 에너지 정량은 $v_1=362$ [meV], $v_2=190$ [meV], $v_3=374$ [meV], $v_4=162$ [meV] 이고 에너지손실 스펙트럼에 불충분한 에너지 분해진동모드 q_{13} , q_{24} 를 취급한다.[4] 전리단면적은 $e < 15$ [eV]을 제외한 영역에서는 W.E. Bies[3]과 Hunter[11]에 의해 얻어진 전체 전리단면적이 적용되었으며 $e < 15$ [eV]의 영역에 대해서는 Haddad [12]의 Data를 적용하였다.

전자부착단면적(q_a)은 실제적으로 그 값이 너무 작기 때문에 전자수송계수에 거의 영향을 주지 않는다. 해리 단면적에 대해서는 Walker[13]와 Kline, W.E. Bies의 실험 결과치를 적용하였다[14]~[15].

4. 결과 및 고찰

4.1 전자이동속도

전자이동속도는 $E/N : 0.1 \sim 300$ [Td]의 범위와 $p=1$ [Torr]의 조건에서 Y. Ohmori, Hunter, Carter의 실험치와 이론치를 비교검토 하였다. CH_4 가스의 운동량변환단면적은 $0.2 \sim 0.5$ [eV] 부근의 Ramsauer minimum[11]과 동일한 에너지영역에서 진동여기단면적을 갖기 때문에 진동여기충돌에 의하여 낮은 에너지대의 전자가 많기 때문에 전자에너지의 순환이 발생하고 완화시간의 감소 효과로 $E/N : 40 \sim 300$ [Td]의 영역에서 Drift속도는 상승하며 이동도의 부구배 특성을 나타내었다.

압력($p=1$ [Torr])의 경우 MCS와 BEq로 계산된 이동속도는 전체 E/N [Td]의 영역에서는 거의 일치하는 경향이 있다. 하지만 $E/N : 0.1, 1$ [Td]의 저에너지 영역에서는 MCS와 BEq의 이론치는 약간의 오차가 발생하였다. 이 오차의 원인으로 CH_4 가스가 갖는 큰 진동여기단면적과 운동량변환단면적의 작용으로 나타나는 에너지분포의 비등방성에 의한 2항 근사 해석의 오차와 전자부성특성이 나타난 영역에서의 이동속도의 측정과 해석의 문제로 인한 오차로 생각된다. 또한 Y Ohmori[16]의 실험치와 MCS와 BEq의 Data를 비교하여도 이동속도의 곡선특성이 잘 일치됨을 보여준다. 한편 각각의 압력에 대한 이동속도의 특성을 보면 압력이 $p=0.5$ [Torr] 낮은 경우 최대값이 압력 $p=1$ [Torr]과 거의 일치하지만 압력 $p=0.1$ [Torr]의 경우는 최대값이 둘의 경우 보다 큼을 알 수 있다.

이는 후에 논의할 평균에너지의 변화를 지배하는 변수로서 이해된다.

4.2 확산계수

확산계수는 기체분자수밀도 N 과 확산계수 D 의 곱 ND 를 E/N 의 함수로 표현하였다. CH_4 가스중의 전자확산계수는 전자이동속도(\bar{W})의 영향으로 하전입자의 공간적 구배와 전계가 공존하는 공간내에서 평형상태의 밀도 분포를 나타낸 것으로 생각된다. 전자확산계수 절대치를 관찰해보면

$E/N : 4 \sim 20$ [Td]부근에서 반비례하고 $E/N : 20$ [Td]부터는 다시 비례하는 경향을 보여준다. Ar 가스에서도 이러한 특징이 발견되고 있고 이런 특징은 q_m 에 Ramsauer minimum을 가지고 있는 가스의 독특한 특징으로 생각된다. 한편 방향확산계수의 이론적 값과 Carter와 Al-Amin[17]의 실험 데이터를 비교하였다.

4.3 특성에너지

특성에너지는 이동도와 확산계수의 비로 입자의 무질서한 운동의 결과이다. 이동도와 확산계수와 관계를 Einstein의 관계식이라고도 한다. 이 관계식은 이동도를 생각하는 경우에는 주로 전계만 존재하고 밀도 분포는 존재하지 않는다고 생각하였다. 또 확산을 고려할때는 전계는 존재하지 않는다고 가정하였다. 본 논문에서는 전계와 이온의 밀도분포가 동시에 존재하고 또 충돌상태를 생각하여 이동도와 확산계수와의 관계 즉 특성에너지를 그림 2와 같이 조사하였다. 특성에너지는 그림에 나타난 바와 같이 $E/N : 1 \sim 100$ [Td]의 영역에서 특성에너지의 값이 급격히 증가하는 것을 볼 수 있다. 이것은 여기충돌에 의한 이동속도의 상승과 전리충돌에 의한 전자에너지보존법칙의 영향을 받은 것으로 생각된다. 특성에너지는 $E/N : 2 \sim 150$ [Td]의 범위에서는 이론치와 Kline과 Ohmori의 실험치가 잘 일치하지만 그 이외의 영역에서 다소의 차이를 보이는 것은 이동속도의 차이로 E/N 의 증가에 따라 이동도와 확산계수의 증가와 감소에 기인한다고 생각된다.

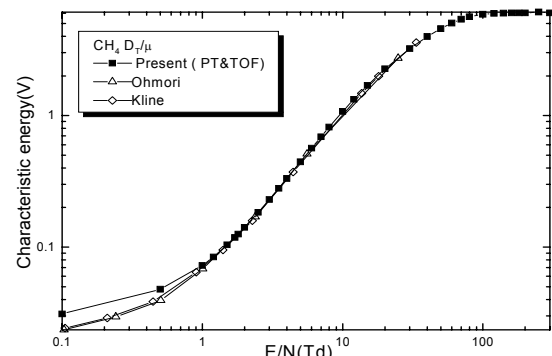
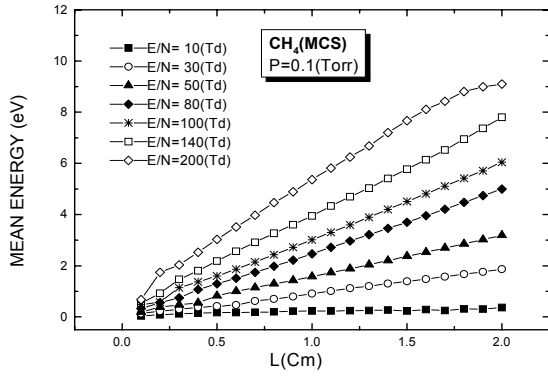


그림 2 CH_4 가스 중에서 특성에너지
Fig. 2 Characteristic energy in CH_4 gas

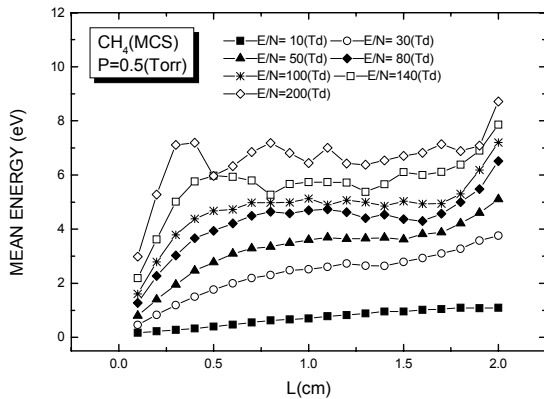
4.4 전자평균에너지

그림 3의 (a), (b), (c)는 전자의 평균에너지의 값을 압력 $p=0.1, 0.5, 1$ [Torr] 에서 나타낸 것이다. 평균에너지는 평행관전극간의 거리 2 [cm], E/N [Td], 초기전자수(3,000개)를 MCS법으로 추적하여 나타내었다. 전자의 평균에너지는 전극간의 거리 및 시간의 함수로 계산되는 전자에너지 분포 함수, 전자이동속도 등에 관계되는 중요한 물리량이다.

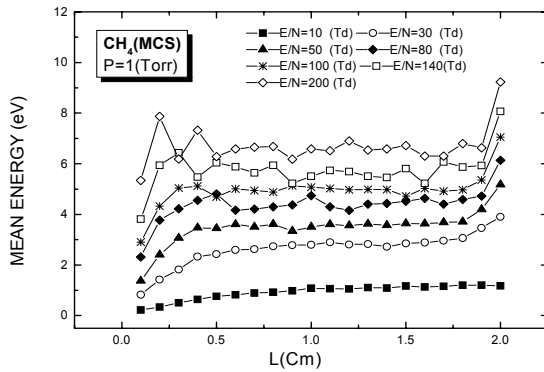
그리고 전자의 평균에너지와 특성에너지와의 관계는 $D/\mu = KT/e = 2e/3e$ 의 관계이며 전자의 평균에너지는 특성에너지의 $2/3e$ 배가 될 경우 그 값이 일치한다.



(a) P=0.1 Torr



(b) P=0.5 Torr



(c) P=1.0 Torr

그림 3 CH₄ 가스 중에서 전자의 평균에너지
Fig. 3 Mean energy of electrons in CH₄ gas

각각의 압력에 대한 평균에너지의 변화 추이를 살펴보면 저압의 경우는 평균에너지의 값이 정구배의 특성을 지니고 있음을 알 수 있으며 압력이 높음에 따라 평균에너지의 값의 변화는 음극과 양극에서를 제외한 부분의 값은 일정함을 알 수 있다. 이러한 특성이 나타나는 이유는 저압의 경우 충돌주파수가 고압의 경우보다 적음으로 인해 전자의 운동에너지가 거리가(혹은 시간)의 경과에 따라 커짐을 의미한다.

4.5 전자에너지분포함수

본 연구에서는 평형상태의 평균에너지를 이용하여 전자에

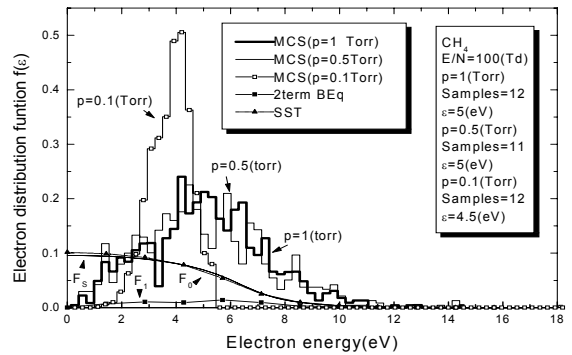


그림 4 CH₄ 가스중에서 전자에너지 분포함수
Fig. 4 Energy distribution function of electron in CH₄

너지 분포함수를 산출하였다. 따라서 전극간의 거리와 각각의 E/N : 10, 100 [Td]의 평균에너지변화량은 샘플링의 차에 의하여 음극과 양극에 가까운 영역에서는 증가하고 중심의 영역에서는 평형상태의 값을 나타낸다.

그림 4는 전자군 파라미터의 직접 관련되는 물리량인 전자에너지 분포함수를 나타내었다.

전계가 인가될 때 기체 중을 이동하는 전자군의 에너지분포함수는 전자의 각각의 에너지에 대한 확률밀도, 전자와 분자사이의 각종 충돌단면적과 방전현상으로 나타나는 전자수송특성에 직접 관련되는 물리량이다. 하전입자는 여러 종류의 에너지성분을 갖는 기체분자가 열평형상태에 있는 경우에 에너지크기와 온도에 의존하는 방전공간의 등방적인 맥스웰-볼츠만 에너지 분포함수이다. 이러한 전자에너지분포 f(ε)를 E/N : 10, 100[Td]에 대하여 전자가 운동할 때 Sample(15, 12), 거리(1.5, 1.2cm), 평균에너지(0.6, 5 eV)의 범위에서 MCS법으로 추적하여 나타난 전자에너지분포 계산값과 전반적으로 큰 차이를 나타내었다. 또한 여기로 인하여 전자의 에너지를 잃어버리는 확률이 커지면 불평형의 영역도 크게 나타나는 것으로 생각된다.

f(ε)의 초기값에서는 전자에너지가 증가하고 높은 에너지 측에서는 감소하는 경향이 나타난다. 이러한 현상은 진동여기충돌과 진동여기단면적의 공명효과 때문에 나타나는 것으로 생각된다. 한편 각각의 압력에 대한 분포함수의 수치는 평균에너지의 값에 대한 값과 일치하는 경향을 보이고 있음을 알 수 있다. 이것은 분포함수가 평균에너지를 하나의 변수로 함을 의미한다.

5. 결론

CH₄ 가스 중 E/N : 0.1~300[Td]의 범위에서 MCS와 BEq법에 의하여 전자에너지분포함수와 전자군 수송계수의 결과로부터 다음과 같은 결과를 얻었다.

1. E/N : 10, 100[Td]에 대한 전자에너지분포함수는 전충돌단면적을 사용하여 계산하였고 그 값으로부터 전자군 파라미터를 구하였다. 압력변화에 따른 전자에너지 분포함수의 차이가 E/N[Td]와 전자의 평균에너지의 값

에 따라 큰 영향이 미치는 것을 확인하였다.

2. 압력의 변화에 따른 평균에너지와 분포함수의 값은 이동속도를 변수로 하여 좌우되는 값이며 또한 이동속도 및 확산계수의 영향이 지배적이었다.

본 연구에 의해 산출된 전자군 파라미터는 시뮬레이션에 있어서 약전리 플라즈마의 많은 정보 뿐 만 아니라 특히 전자와 원자, 분자들 사이의 상호작용에 의한 저에너지 영역의 전자산란은 중요한 데이터로서 활용이 기대되어진다.

감사의 글

본 논문은 인천대학교 2012년도 자체연구비 지원에 의하여 연구되었습니다. 대학당국에 감사드립니다.

참 고 문 헌

[1] 山本,生田, “モンテカルロシミュレーションによるCF4カ
スの 電子衝突 断面積”, 電氣學會 放電研究會資料,
ED-92-101, pp.71-80, 1992.

[2] 菅野卓雄 “半導體 プラズ마 プロセス技術”産業圖書),
pp. 38-50, 1993.

[3] L. E. Kline, and W. E. Bies. “Measurements of
swarm parameters and derived electron collision
cross sections in methane”, J. Appl. Phys. 65.
3311-3323. 1989.

[4] Y Ohmori, K Kitamori, H Tagashira ” Boltzmann
equation analysis of electron swarm behavior in
Methane” The Institute of Physics. 437-455 1986

[5] Y Ohmori, K Kitamori, H Tagashira ”Boltzmann
equation analysis of electron swarm behavior in
Methane” The Institute of Physics. 437-455 1986

[6] Rubinstein, L. “Simulation and Monte Carlo Method”,
John Wiley, New York. 1981

[7] H. Itoh and T.Musha ”Monte Carlo Calculations of
Motions in Helium”, J.Phys. soc. Japan, Vol.15, No.
9, pp.1675-1680, 1960.

[8] 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.

[9] 몬テカル로法とシミュレーション(培風館),1989.

[10] Huxley L G H and Crompton R W“The Diffusion
and Drift of Electrons in gases”(New York:Wiley)
1974

[11] S. R. Hunter, J. G. Carter. ”Electron transport
measurements in methane using an improved pulsed
Townsend technique” J. Appl. Phys.60. 1986

[12] G. N. Haddad ”Low Energy Electron Collision Cross
Sections for Methane” Aust. J. phys. 38. 677-85.
1985

[13] M. G. Curtis, Isobel C. Walker and K. J. Mathieson,
”Electron Swarm Characteristic Energies(Dr/μ) in
Tetrafluoro methane(CF4) at Low E/N”, IOP

Publishing Ltd, pp.1271-1274, 1988.

[14] 松村, 伊達, 田頭, 電氣學會放電研究會資料 ED-92-97,
pp.31-39, 1992.

[15] Philip E. Luft, ”Description of a Backward
prolongation program for computing transport
coefficients”, JILA, Information center report, No.19,
1975.

[16] Y Ohmori, K Kitamori, H Tagashira ”Boltzmann
equation analysis of electron swarm behavior in
Methane” The Institute of Physics. 437-455 1986

[17] S. A. J. Al-Amin and J. Lucas, ”Electron swarm
parameters in oxygen and methane”, J. Phys.
D:Appl. 18. pp. 1781-1794, 1985.

저 자 소 개



김 상 남 (金 相 南)

1951년 3월 21일생. 1978년 숭실대학교
전기공학과 졸업. 1980년 숭실대학교 대
학원 졸업(석사), 2001년 동국대학교 대
학원 졸업(공학박), 1978년~2009년 시립인
천전문대학 전기과 교수, 2010년~국립
인천대학교 전기공학과 교수
Tel : 032-835-8439
Fax : 032-835-4922
E-mail : sn7332@incheon.ac.kr
sn7332@hanmail.net