

04

Генерация сильноионизованной металлической плазмы анодным испарением в импульсном разряде

© Н.В. Гаврилов^{1,2}, Д.Р. Емлин¹, А.С. Каменецких¹¹ Институт электрофизики УрО РАН, Екатеринбург, Россия² Уральский федеральный университет, Екатеринбург, Россия

E-mail: gavrilov@ier.uran.ru

Поступило в Редакцию 15 августа 2024 г.

В окончательной редакции 2 октября 2024 г.

Принято к публикации 31 октября 2024 г.

Исследовано влияние параметров импульсно-периодического (1 ms, 60–450 Hz) разряда с самонакаливаемым полым катодом и испаряемым анодом на плотность и степень ионизации потока паров алюминия. Показано, что увеличение амплитуды тока при постоянном среднем токе разряда 12–16 А приводит к трех-четырёхкратному увеличению скорости осаждения пленки, росту доли ионов Al^+ в потоке пара до 100% при 80 А и доли ионов Al^+ в общем ионном токе до 30% при 110 А. Усовершенствован метод определения доли ионов металла в потоке пара сеточным зондом с тормозящим электрическим полем.

Ключевые слова: самонакаливаемый катод, импульсный разряд, анодное испарение, степень ионизации пара.

DOI: 10.61011/PJTF.2025.05.59896.20087

Важной характеристикой методов осаждения пленок является доля ионов в потоке осаждаемых частиц. Ионное сопровождение улучшает сцепление покрытия с подложкой и оказывает влияние на процессы роста и микроструктуру пленок, а также на уровень внутренних напряжений. В последние годы получили интенсивное развитие методы IPVD [1], основанные на ионном распылении в магнетронном разряде, которые позволяют достичь высокой степени ионизации потока атомов металла наложением высокочастотного поля (ICP MS) [2,3] или использованием мощного импульсного разряда (HiPIMS) [1,4].

В разрядах с термоэмиссионным катодом и испаряемым анодом [5] высокая степень ионизации пара достигается при токах свыше 100 А [6]. Сильноточный разряд с самонакаливаемым полым катодом (СНПК) применялся для ионного сопровождения процесса осаждения пленок Al_2O_3 электронно-лучевым испарением [7], а также для плавки металлов [8]. Для стабильного горения разряда с СНПК требуется поток инертного газа через катодную полость, поэтому плазма такого разряда с испаряемым анодом содержит наряду с ионами металла и ионы газа. При подаче активных газов в объем в таком разряде реализуется режим реактивного испарения и осаждаются пленки бинарных соединений [9].

Степень ионизации плазмы в СНПК-разряде изменяют регулировкой доли тока разряда на неиспаряемый анод, однако при этом возрастает и концентрация ионов газа в плазме. Альтернативным способом может быть применение импульсно-периодического режима (ИПР) разряда с испаряемым анодом. Рост импульсного тока ИПР-разряда приведет к увеличению ионного тока, при этом изменение степени ионизации пара будет зависеть

от соотношения скоростей изменения силы тока и давления пара, доля ионов газа в плазме также будет изменяться. Исследования динамики импульсного испарения в СНПК-разряде и влияния параметров ИПР на степень ионизации и состав плазмы ранее не проводились.

Методы прямого измерения доли ионов металла в паровом потоке основываются на измерении прироста массы на коллекторе после прохождения металлического потока через тормозящее ионы электрическое поле [2,3] или отклоняющее ионы магнитное поле [10] и сравнении результатов с величиной, полученной без фильтрации парового потока. Однако необходимость проведения двух измерений увеличивает погрешность измерений.

В работе исследовалось влияние параметров ИПР-разряда с СНПК и термоизолированным анодом-тиглем при постоянном среднем токе разряда на скорость осаждения пленки Al, плотность ионного тока из плазмы и степень ионизации потока паров металла. Измерены параметры плазмы и описаны устройство с тормозящим электростатическим полем и метод определения доли ионов металла в паровом потоке посредством единичных измерений.

Электродная система разряда содержит соосно размещенные полый катод и анод-тигель, установленные на расстоянии 250 mm (рис. 1). Изменением средней величины тока в цепи анода-тигля регулируют его температуру и поток пара испаряемого вещества. Катод ($d = 6$ mm, $l = 50$ mm) был изготовлен из TiN, теплоизолированный тигель ($d = 14$ –20 mm, масса 20–30 g), в который загружались гранулы испаряемого металла (Al, 4 g), был изготовлен из графита. Двухэлектродный сеточный зонд (ДСЗ) для измерения степени ионизации

потока пара (СИ) располагался на расстоянии 100 mm от тигля под углом 30° . Электрод ДСЗ, обращенный к плазме, изготовлен из тканой сетки из нержавеющей стали с размером ячейки в свету $30 \times 30 \mu\text{m}$ и геометрической прозрачностью 0.3; коллектором служил диск из нержавеющей стали, расположенный на расстоянии 2 mm от сетки; размер входной апертуры устройства составлял 20 mm. Выбранным методом измеряется не степень ионизации плазмы, а доля ионов в потоке пара, поскольку именно этот параметр является ключевым в процессе нанесения пленок.

Давление газа в объеме составляло 0.4 Pa при потоке Ag через СНПК, равном $100 \text{ cm}^3/\text{min}$. Для разогрева полого катода и ускорения развития импульсного разряда с СНПК использовался газовый разряд с частотой 36 kHz и импульсным током до 14 A на расположенный вблизи катода неиспаряемый анод. Измерения параметров плазмы и потока пара проводились после выхода катода на рабочий режим и нагрева тигля до $\sim 1200^\circ\text{C}$.

Разряд функционировал в ИПР со средним током разряда 12–16 A, постоянство которого $I_{av} = I_d f \tau$ обеспечивалось одновременным изменением амплитудного тока I_d в пределах 30–200 A и частоты повторения $f = 60\text{--}450 \text{ Hz}$ при фиксированной длительности импульсов τ . Зависимости напряжения ИПР-разряда от амплитудного тока при $I_{av} = \text{const}$ являются линейно растущими [11]. Без загрузки Al в тигель величина U составляет $\sim 160 \text{ V}$ для разряда в Ag с током 150 A, $f = 140 \text{ Hz}$, $\tau = 0.6 \text{ ms}$, в режиме с испарением Al при одинаковых параметрах разряда U ниже на 40–60 V.

Импульсная мощность нагрева материала определяется как $I_d(U_a + 2kT_e/e + \phi/e)$ [8], где ϕ — работа выхода материала анода ($\sim 4 \text{ eV}$ для Al), U_a — анодное падение потенциала, T_e — электронная температура. Оценки показывают, что при четырехкратном росте тока I_d (50–200 A) импульсная тепловая мощность на аноде увеличивается в ~ 10 раз. Изменение температуры поверхности вещества при кратковременном высокоэнергетическом воздействии с плотностью мощности F без учета потерь мощности на испарение приближенно описывается соотношением [12]: $\Delta T = (2F/\lambda)(a\tau/\pi)^{1/2}$, где τ — длительность импульса, λ — теплопроводность, a — коэффициент температуропроводности. При плотности мощности на аноде 6.6 kW/cm^2 и $\tau = 1 \text{ ms}$ прирост ΔT составляет $\sim 100^\circ\text{C}$, что обеспечивает примерно трехкратное увеличение давления насыщенных паров за время импульса при средней температуре тигля 1200°C [13].

Температура электронов, определенная методом двойного зонда, составила 8–10 eV. В этом методе для оценки T_e используют производную зондовой характеристики при плавающем потенциале зонда, когда баланс токов на зонд обеспечивается быстрыми электронами. Высокая T_e может быть обусловлена наличием в плазме сильноточных разрядов с СНПК потока электронов с энергией $\sim 10\text{--}20 \text{ eV}$ [14]. Двойной зонд был установлен

на расстоянии от тигля 5 cm со смещением относительно оси на 2.5 cm. Измерения проводились при $I_{av} = 10 \text{ A}$ и $\tau = 0.6 \text{ ms}$. Величина T_e возрастала при увеличении I_d от 50 A ($f = 350 \text{ Hz}$) до 200 A ($f = 100 \text{ Hz}$) и снижалась при перемещении зонда к тиглю.

Путем подбора аппроксимирующих функций для зондовых характеристик одиночного зонда и их двойного дифференцирования была определена величина анодного падения потенциала U_a , которая возрастала с +1.5 до +9.5 V при увеличении I_d от 50 до 200 A.

Полный ток ионов из плазмы I_i , оцененный по величине тока в цепи цилиндрического электрода ($d = 160 \text{ mm}$), внутрь которого помещалась разрядная система, составлял до 20% от I_d (рис. 2). Скорость осаждения Al-пленок s при постоянном среднем токе ИПР-разряда, равном 12 A, линейно увеличивается с ростом I_d (рис. 2).

Обычный способ использования ДСЗ (рис. 1) для измерения СИ заключается в измерении прироста массы коллектора без подачи напряжения между электродами и с отсечкой ионов. По результатам измерений в этих двух режимах рассчитывается величина СИ. Метод имеет верхний предел измерений по плотности ионного тока, который обусловлен нарушением сплошности слоя пространственного заряда у сетки и зависит от размеров ячейки сетки, поэтому мощность высоко-

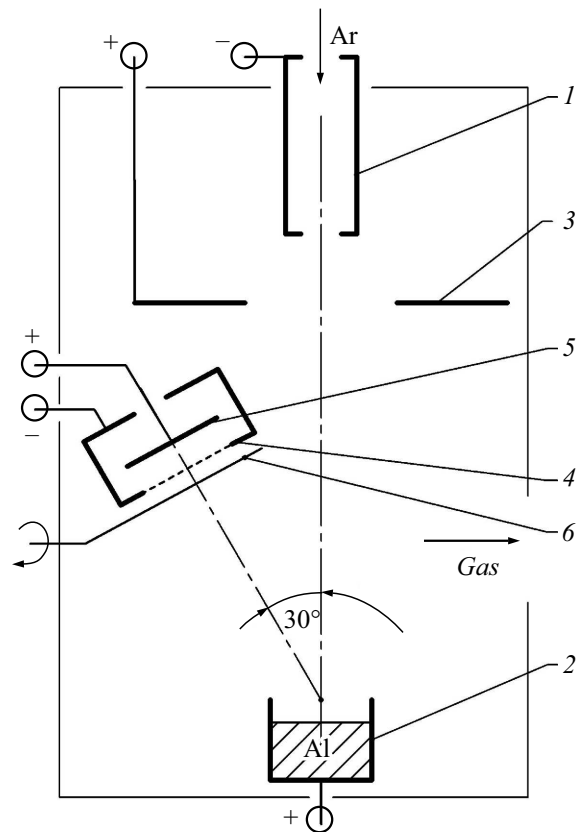


Рис. 1. Схема эксперимента: самонакаливаемый катод (1), тигель (2), вспомогательный анод (3), двухэлектродный сеточный зонд, включающий сетку (4) и коллектор (5), заслонка (6).

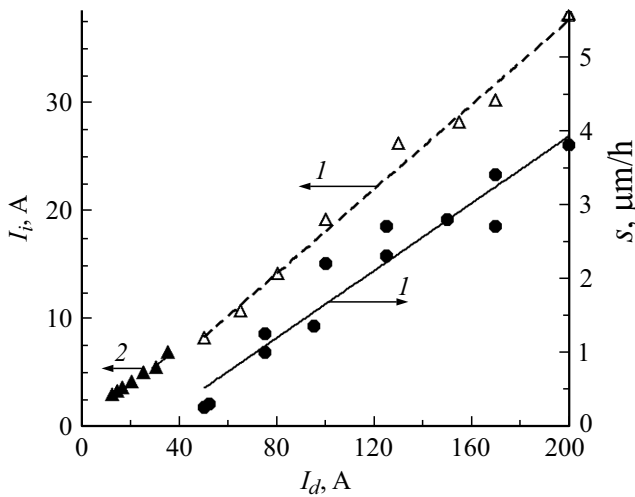


Рис. 2. Зависимость полного тока ионов из плазмы I_i и скорости осаждения пленки алюминия s от тока разряда. 1 — в импульсно-периодическом режиме, 2 — в непрерывном режиме. Средний ток разряда 12 А. В непрерывном режиме $s = 0.5 \mu\text{m/h}$.

частотного разряда при измерениях СИ в устройстве ICP MS была ограничена на уровне $\sim 500 \text{ W}$ [3]. Другое ограничение обусловлено возникновением виртуального анода в промежутке между электродами. Плотность тока Бурсиана [15] j_b , при которой возникает виртуальный катод, составляет $8j_c$, где j_c — плотность тока, рассчитываемая из закона Чайльда–Ленгмюра. Для ионов Al^+ с плотностью потока 25 mA/cm^2 , ускоряемых в ионном слое у сетки до энергии 40 eV, толщина ионного слоя составляет $\sim 0.1 \text{ mm}$, при этом длина промежутка сетка–коллектор должна быть $< 0.3 \text{ mm}$.

Предложенное усовершенствование метода заключается в измерении прироста массы сетки и коллектора в одном эксперименте с отсечкой ионов, что при известной геометрической прозрачности сетки α позволяет рассчитать величину СИ. Такой подход позволяет снизить энергию и повысить плотность измеряемых ионных потоков.

По результатам измерений величин прироста массы сетки M_g и массы коллектора M_c величина СИ определялась как $\{M_g - M_c[(1 - \alpha)/\alpha]\}/(M_g + M_c)$. Измерения проводились с использованием весов I класса точности с дискретностью 0.1 mg. Для повышения точности измерений время нахождения ДСЗ в потоке плазмы увеличивали до 3 h. Зависимость доли ионов Al^+ в потоке пара от амплитудного тока разряда при среднем токе 12.6 А показана на рис. 3 (кривая 1). При $I_d \geq 80 \text{ A}$ степень ионизации потока достигает 100%.

Результаты расчета импульсной плотности тока ионов металла I_m^+ по величине привеса массы сетки за вычетом вклада нейтральных атомов $I_m^+ = e\{M_g - M_c[(1 - \alpha)/\alpha]\}/(M_i t r f)$, где M_i — масса иона [kg], t — продолжительность измерений, e — элементарный заряд, показаны на рис. 3 (кривая 2).

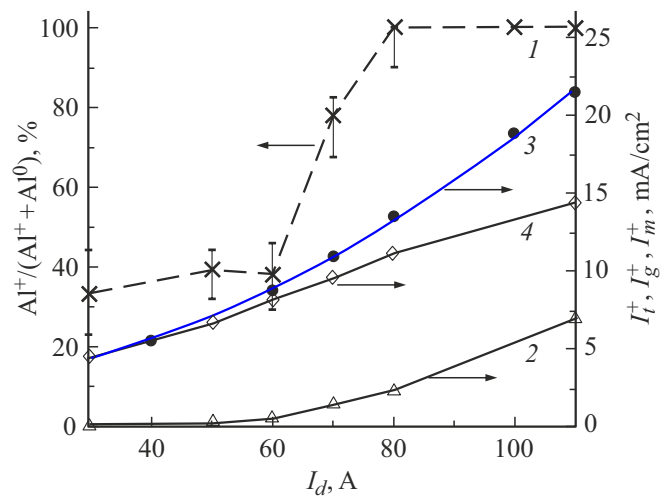


Рис. 3. Зависимость доли ионов Al^+ в потоке пара (1), импульсной плотности тока металлических ионов I_m^+ (2), суммарного ионного тока I_t^+ (3) и газовых ионов I_g^+ (4) от амплитуды тока разряда. Средний ток ИПР-разряда 12.6 А.

Суммарную плотность тока ионов газа и металла I_t^+ определяли по величине тока на отрицательно смещенный (-100 V) коллектор ДСЗ без сетки. Полученная зависимость I_t^+ от I_d показана на рис. 3 (кривая 3). Зависимость плотности тока ионов газа I_g^+ , рассчитанная как разность $(I_t^+ - I_m^+)$ для кривых 2 и 3, показана кривой 4 на рис. 3.

Доля ионов металла в общем ионном потоке монотонно возрастает с током I_d и достигает $\sim 30\%$ при $I_d = 110 \text{ A}$. При $I_d = 80 \text{ A}$ величина СИ достигает 100%. Рост тока ионов металла в условиях 100% ионизации обусловлен повышением давления пара с ростом I_d .

Таким образом, изменением параметров импульсно-периодического режима разряда с самонакаливаемым полым катодом и испаряемым анодом обеспечиваются регулировка степени ионизации потока металлического пара и генерация полностью ионизированных потоков пара при относительно малых средних токах разряда (12–16 А). Быстрый рост температуры поверхности расплава в течение импульса и повышение давления насыщенных паров приводят к кратному увеличению скорости осаждения покрытий по сравнению с непрерывным режимом разряда при одинаковом среднем токе. Адаптация метода измерения степени ионизации потоков металлического пара сеточным зондом, основанная на измерении прироста массы двух электродов зонда в условиях отсечки ионного потока на коллектор, обеспечивает проведение измерений в плотных потоках ионов низких энергий.

Финансирование работы

Работа выполнена при финансовой поддержке Министерства науки и высшего образования РФ (проект

075-15-2021-1348 в рамках мероприятия 4.1.8 и проект 4.38 Программы развития УрФУ).

Конфликт интересов

Авторы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

Список литературы

- [1] U. Helmersson, M. Lattemann, J. Bohlmark, A.P. Ehiasarian, J.T. Gudmundsson, *Thin Solid Films*, **513**, 1 (2006). DOI: 10.1016/j.tsf.2006.03.033
- [2] M. Yamashita, *J. Vac. Sci. Technol. A*, **7**, 151 (1989). DOI: 10.1116/1.575744
- [3] S.M. Rossnagel, J. Hopwood, *Appl. Phys. Lett.*, **63** (24), 3285 (1993). DOI: 10.1063/1.110176
- [4] K. Macák, V. Kouznetsov, J. Schneider, U. Helmersson, I. Petrov, *J. Vac. Sci. Technol. A*, **18**, 1533 (2000). DOI: 10.1116/1.582380
- [5] H. Ehrich, B. Hasse, M. Mausbach, K.G. Müller, *J. Vac. Sci. Technol. A*, **8**, 2160 (1990). DOI: 10.1116/1.577033
- [6] М.М. Никитин, *Изв. РАН. Сер. физ.*, **74** (2), 306 (2010). [M.M. Nikitin, *Bull. Russ. Acad. Sci. Phys.*, **74** (2), 285 (2010). DOI: 10.3103/S1062873810020383].
- [7] H. Morgner, M. Neumann, S. Straach, M. Krug, *Surf. Coat. Technol.*, **108-109**, 513 (1998). DOI: 10.1016/S0257-8972(98)00633-1
- [8] В.С. Чередниченко, Б.И. Юдин, *Вакуумные плазменные электроды* (ИНФРА-М, М., 2022).
- [9] Н.В. Гаврилов, А.С. Каменецких, Д.Р. Емлин, П.В. Третников, А.В. Чукин, *ЖТФ*, **89** (6), 867 (2019). DOI: 10.21883/JTF.2019.06.47632.214-18 [N.V. Gavrilov, A.S. Kamenetskikh, D.R. Emlin, P.V. Tretnikov, A.V. Chukin, *Tech. Phys.*, **64** (6), 807 (2019). DOI: 10.1134/S1063784219060082].
- [10] A.V. Tyunkov, A.A. Andronov, E.M. Oks, Yu.G. Yushkov, D.B. Zolotukhin, *Vacuum*, **208**, 111722 (2023). DOI: 10.1016/j.vacuum.2022.111722
- [11] Н.В. Гаврилов, Д.Р. Емлин, *ЖТФ*, **87** (11), 1748 (2017). DOI: 10.21883/JTF.2017.11.45141.2230 [N.V. Gavrilov, D.R. Emlin, *Tech. Phys.*, **62** (11), 1750 (2017). DOI: 10.1134/S1063784217110081].
- [12] W. Hartmann, V. Dominic, G.F. Kirkman, M.A. Gundersen, *Appl. Phys.*, **65**, 4388 (1989). DOI: 10.1063/1.343430
- [13] R.E. Honig, *RCA Rev.*, **18**, 195 (1957).
- [14] V.M. Nerovnyi, A.D. Khakhalev, *J. Phys. D*, **41**, 035201 (2008). DOI: 10.1088/0022-3727/41/3/035201
- [15] М.В. Незлин, *Динамика пучков в плазме* (Энергоиздат, М., 1982).