

# NUMERICKÉ STUDIUM STĚNOVÉ VRSTVY PLAZMATU VÁLCOVÉ KATODY

*J. Blažek<sup>1)</sup>, P. Špatenka<sup>2)</sup>, J. Olejníček<sup>3)</sup>, P. Bartoš<sup>1)</sup>*

<sup>1)</sup> Jihočeská univerzita, katedra fyziky, Jeronýmova 10, 371 15 České Budějovice

<sup>2)</sup> Technická univerzita Liberec, katedra materiálů, Hálkova 6, 461 17 Liberec

<sup>3)</sup> Fyzikální ústav AV ČR, Na Slovance 2, 182 21 Praha 8

## Abstrakt

Při plazmatické depozici tenkých vrstev či při plazmatickém ošetření povrchů ve stejnosměrném výboji rozhodují vlastnosti plazmatu v těsné blízkosti substrátu, v tzv. stěnové vrstvě (anglicky sheath). Předpokládáme, že substrát je umístěn na katodě a je tak vystaven bombardování kladnými ionty. Pro průmyslové využití je významné, aby plocha substrátu mohla být co největší současně se zajištěním homogenních podmínek v celém jejím rozsahu. Jako východisko k řešení tohoto úkolu se nabízí přechod od rovinného uspořádání elektrod k uspořádání, kdy obě elektrody tvoří dva sousední válce. V článku se zabýváme řešením poměrů ve stěnové vrstvě plazmatu s válcovou symetrií a za předpokladu, že v této vrstvě dochází k pružným srážkám iontů s neutrály. Analytické výpočty jsou doplněny numerickými výpočty, realizovanými v MATLABu.

**Klíčová slova:** stěnová vrstva plazmatu, stejnosměrný výboj, collisional plasma sheath

## Úvod

Při plazmatické depozici tenkých vrstev rozhodují vlastnosti plazmatu v tenké vrstvě těsně u povrchu substrátu, v tzv. stěnové vrstvě. V této vrstvě je soustředěn téměř celý potenciálový spád stejnosměrného výboje mezi plazmatem a substrátem. Podmínky v ní zásadně ovlivňují vlastnosti deponovaných vrstev.

V MATLABu jsme pro tento účel odladili program, který počítá průběh elektrického pole a elektrické toky ve stěnové vrstvě, vytvořené při katodě ve stejnosměrném výboji. Předpokládáme, že substrát je vodivě spojen s katodou. Konkrétní výpočty byly prováděny pro parametry plazmatu, nastavené pro depozici cylindrických uhlíkových struktur, tzv. nanotubes [1]. Zde uvedeme pouze základní parametry, experimentální uspořádání je podrobně popsáno v [2]. Tlak v reaktoru byl 10 mbar. Ze sondových měření byla určena koncentrace elektronů v objemu plazmatu (bulk)  $n_b = 2 \cdot 10^{17} \text{ m}^{-3}$ , a jejich teplota,  $T_e = 0.8 \text{ eV}$ . Napětí ve stěnové vrstvě  $U_s = 650 \text{ V}$  bylo s dostatečnou přesností stanoveno jako napětí mezi elektrodami. V experimentu byl měřen výbojový proud. Ten silně závisel na složení plazmatu.

## Základní rovnice

Téměř celý spád potenciálu ve stejnosměrném výboji je koncentrován v tenké vrstvě u katody – sheathu. Za předpokladu dostatečně vysokého napětí na katodě (řádově několik set voltů) je výskyt elektronů v této vrstvě zanedbatelný a náboj je určen především koncentrací kladně nabitých iontů. Rozložení potenciálu je pak dáno Poissonovou rovnicí ve tvaru

$$\nabla^2 U = -\frac{en}{\epsilon_0}, \quad (1)$$

v níž  $U$  je potenciál elektrického pole ve vrstvě (intenzita pole  $\vec{E} = -\nabla U$ ) a  $n$  je koncentrace iontů.

Pro tlaky kolem 100 Pa dochází v katodové vrstvě ke srážkám iontů s neutrály. Zanedbáme-li při těchto srážkách další ionizaci, pak platí rovnice kontinuity

$$\nabla \cdot (n\vec{v}) = 0, \quad (2)$$

kde  $\vec{v}$  je driftová (unášivá) rychlost iontů.

Poslední rovnice svazuje rychlost iontů s elektrickým polem. Výraz pro driftovou rychlost jsme převzali z [3]:

$$\vec{v} = \mu \vec{E}, \quad \mu \equiv \frac{2}{\pi} \cdot \frac{e\lambda}{M|\vec{v}|}. \quad (3a)$$

Ve výrazu pro pohyblivost  $\mu$  značí  $M$  hmotnost iontů a  $\lambda$  jejich střední volnou dráhu,  $\lambda \sim 1/n_g \sigma$ , kde  $n_g$  je koncentrace neutrálů a  $\sigma$  srážkový průřez. Ten je obecně funkcí energie. Vztah (3a) ještě přepíšeme do podoby

$$v^2 = \alpha |E|, \quad \alpha \equiv \frac{2e\lambda}{\pi M}. \quad (3b)$$

Koeficient  $\alpha$  budeme ve výpočtech brát jako konstantu, nezávislou na energii iontů.

Rovnice (1) – (3) představují systém pěti skalárních rovnic pro pět neznámých  $U, n, \vec{v}$ . Systém je nutné doplnit okrajovými podmínkami. Protože není předem známa hranice sheathu, jsou okrajové podmínky pro potenciál „přeurčené“: Na hranici sheathu předpokládáme přibližně  $E \approx 0, U \approx 0$ . Jelikož téměř veškerý spád potenciálu  $U_s$  mezi anodou a katodou je soustředěn mezi katodu a hranici sheathu, je potenciál katody  $-U_s$ . Nakonec je nutné zadat hraniční hodnoty  $n = n_s$  pro koncentraci a  $\vec{v} = \vec{v}_s$  pro rychlost iontů na hranici sheathu. Tento problém je uspokojivě řešen pouze pro bezsrážkové plazma [4]. My jej v tomto článku částečně obejdeme tím, že úlohu budeme řešit v bezrozměrných jednotkách a při přechodu k fyzikálním veličinám zavedeme fenomenologický parametr – hustotu elektrického proudu – který je nutné určovat experimentálně, z měření elektrického proudu výboje.

Bezrozměrné jednotky zavedeme pomocí vhodných škálovacích faktorů. Pišme

$$\begin{aligned} U &= U_s U', & \vec{E} &= G \vec{E}', \\ n &= N n', & \vec{v} &= V \vec{v}', \\ \vec{r} &= L \vec{r}'. \end{aligned} \quad (4)$$

Parametr  $U_s$  odpovídá napětí ve vrstvě, parametr  $V$  s rozměrem rychlosti upřesníme později. Zbývající parametry zvolíme následovně:

$$G = \frac{V^2}{\alpha}, \quad N = \frac{\varepsilon_0 V^4}{\alpha^2 e U_s}, \quad L = \frac{\alpha U_s}{V^2}. \quad (5a)$$

Po tomto přeškálování přejde soustava rovnic (1) – (3) do soustavy

$$\begin{aligned} \nabla'^2 U' &= -n', & (\vec{E}' &= -\nabla' U'), \\ \nabla' \cdot (n' \vec{v}') &= 0, & v'^2 &= |E'|. \end{aligned} \quad (6)$$

(Čárka u operátoru „nabla“ představuje derivace podle čárkovaných souřadnic.)

### Řešení rovnic v bezrozměrných jednotkách

Naším úkolem je podat řešení soustavy rovnic (6) v případě válcové katody. Pro úplnost uvedeme nejdříve známé řešení této soustavy pro rovinný případ, tj. pro limitní případ válce o nekonečně velkém poloměru. Při řešení úlohy s válcovou symetrií budeme rozlišovat, zda plazma bude vně nebo uvnitř katody. V prvním případě půjde o katodu vloženou souose do duté anody, druhý případ dostaneme z prvního záměnou obou elektrod.

#### a) Rovinné elektrody

Osu  $x$  orientujeme kolmo k oběma elektrodám směrem od katody k anodě. Veličiny v soustavě rovnic (6) jsou pro tento planární případ funkcí jedné proměnné  $x$ :

$$\begin{aligned} \frac{dE'}{dx'} &= n', & E' &= -\frac{dU'}{dx'}, \\ \frac{d}{dx'}(n'v') &= 0, & v' &= -\sqrt{-E'}. \end{aligned} \quad (7a)$$

V poslední rovnici jsme při volbě znamének vzali v úvahu opačnou orientaci rychlosti a intenzity vzhledem k orientaci osy  $x$ .

Z rovnice kontinuity v (7) resp. (2) plyne  $nv = \text{konst.}$  Konstantní hustotu elektrického toku ke katodě  $J_0 = |env| = -env$  budeme chápat jako volný parametr, který nebudeme určovat teoreticky, ale z měření. Volbou škálovacího parametru  $V$  ve tvaru

$$V = \left( \frac{\alpha^2 J_0 U_s}{\epsilon_0} \right)^{1/5} \quad (5b)$$

přejde rovnice kontinuity v čárkovaných veličinách do tvaru

$$n'v' = -1. \quad (7b)$$

Soustavu předchozích rovnic doplníme o okrajové podmínky. Vnější hranici stěnové vrstvy označme souřadnicí  $s$ , resp.  $s'$  v bezrozměrné škále. Pak

$$\begin{aligned} U'(0) &= -1, \\ U'(s') &= 0, & E'(s') &= 0. \end{aligned} \quad (8)$$

Řešení soustavy (7) s okrajovými podmínkami (8) je

$$\begin{aligned} E'(x') &= -\left(\frac{3}{2}\right)^{2/3} (s' - x')^{2/3}, & U'(x') &= -\frac{3}{5}\left(\frac{3}{2}\right)^{2/3} (s' - x')^{5/3}, \\ v'(x') &= -(-E')^{1/2}, & n'(x') &= (-E')^{-1/2}. \end{aligned} \quad (9)$$

Polohu hranice mezi stěnovou vrstvou a plazmatem určíme z podmínky  $U'(0) = -1$ :

$$s' = \frac{(500)^{1/5}}{3} \approx 1.16. \quad (10)$$

V rozměrových jednotkách je  $s = Ls'$ , s faktorem  $L$  definovaným v (5a,b).

b) Válcová katoda, plazma vně katody

Úloha má válcovou symetrii, všechny veličiny jsou nyní funkcí radiální proměnné  $r$ . Při přechodu k bezrozměrným veličinám volíme škálovací faktory stejně jako v planárním případě, tj. podle (5a,b). Dostaneme soustavu rovnic

$$\begin{aligned} \frac{1}{r'} \frac{d}{dr'} (r'E') &= n', & E' &= -\frac{dU'}{dr'}, \\ \frac{d}{dr'} (r'n'v') &= 0, & v' &= -(-E')^{1/2} \end{aligned} \quad (11a)$$

Rovnice kontinuity v (11a) má v rozměrových jednotkách řešení  $rnv = \text{konst.}$  Tuto konstantu zapíšeme ve tvaru  $r_0 n_0 v_0 \equiv -r_0 J_0 / e$ , kde veličiny s nulovým indexem jsou vztaženy k vhodnému referenčnímu bodu ve vzdálenosti  $r_0$  od osy katody. Přitom absolutní hodnota hustoty elektrického proudu  $J_0$  ve vzdálenosti  $r_0$  od osy může být určena z experimentu, z celkového proudu výboje. V bezrozměrných jednotkách a se škálovacím faktorem  $V$  z (5b) se rovnice kontinuity redukuje na vztah

$$r'n'v' = -r'_0. \quad (11b)$$

Soustavu (11) je ještě nutné doplnit příslušnými okrajovými podmínkami. S označením poloměru katody  $r_k$  a hranice stěnové vrstvy  $r_s$  mají tyto podmínky tvar

$$\begin{aligned} U'(r'_k) &= -1, \\ U'(r'_s) &= 0, & E'(r'_s) &= 0. \end{aligned} \quad (12)$$

Řešení soustavy (11) s okrajovými podmínkami (12) lze opět vyjádřit v analytické formě. Zde uvedeme pouze elektrickou intenzitu a potenciál, přičemž čárky u bezrozměrných veličin nebudeme pro lepší čitelnost uvádět. Intenzita je

$$E(r) = -r_0^{2/3} \left[ \left( \frac{r_s}{r} \right)^{3/2} - 1 \right]^{2/3}. \quad (13)$$

Při výpočtu potenciálu provedeme v integrálu  $U(r) = -\int E dr$  substituci  $w = r/r_s$  a uvážíme podmínku  $U(r_s) = 0$ . Dostaneme

$$U(r) = -r_0^{2/3} r_s F\left(\frac{r}{r_s}\right), \quad F(w) \equiv \int_w^1 \left( \frac{1}{w'^{3/2}} - 1 \right)^{2/3} dw', \quad w < 1. \quad (14)$$

Poloměr vnější hranice stěnové vrstvy  $r_s$  dostaneme z okrajové podmínky  $U(r_k) = -1$ . Ta vede k transcendentní rovnici

$$r_0^{2/3} r_s F\left(\frac{r_k}{r_s}\right) = 1. \quad (15)$$

V bezrozměrné škále závisí poloměr stěnové vrstvy  $r_s$  na volbě referenčního poloměru  $r_0$ , ve kterém je stanovena hustota elektrického proudu  $J_0$  výboje. Ukážeme, že v rozměrových jednotkách poloměr vrstvy na volbě pomocné souřadnice  $r_0$  již nezávisí. Z formy rovnice (15) vyplývá především, že poloměr  $r'_s$  (bezrozměrné veličiny označujeme na okamžik opět čárkou) je dán funkční závislostí

$$r'_s = r'_k \cdot g(r'_k r_0'^{2/3}), \quad (16)$$

kde  $g$  je vhodná funkce jedné reálné proměnné. Po přechodu k rozměrovým jednotkám prostřednictvím škálovacího faktoru  $L$  z definičních vztahů (5a,b) obdržíme závislost

$$r_s = r_k \cdot g\left(\frac{r_k I^2}{4\pi^2 \varepsilon_0^2 \alpha U_s^3}\right). \quad (17)$$

V předchozím vztahu jsme zavedli veličinu  $I \equiv 2\pi r_0 J_0$ , představující celkový proud připadající na jednotku délky osy katody. V důsledku rovnice kontinuity je tento proud konstantní, nezávislý na volbě referenčního bodu  $r_0$ . V naší teorii jde o fenomenologický parametr, určený z měření, o němž předpokládáme, že je přibližně konstantní, ve skutečnosti je ale tato veličina funkcí napětí, poloměru katody a parametrů plazmatu.

Vzhledem k tomu, že řešení v rozměrových jednotkách nezávisí na volbě referenčního bodu  $r_0$ , můžeme bez újmy na obecnosti položit  $r_0 = r_s$ . Rovnice pro poloměr stěnové vrstvy (15) přechází pro tento výběr do podoby

$$\frac{F(w)}{w^{5/3}} = \frac{1}{r_k^{5/3}}, \quad w \equiv \frac{r_k}{r_s}. \quad (18)$$

Na závěr tohoto oddílu ještě ověříme, že v limitě  $r_k \rightarrow \infty$  dostaneme z (15) tloušťku stěnové vrstvy  $s = r_s - r_k$  ve tvaru (10), odvozeném pro rovinný případ. Především, pro velká  $r_k$  je přibližně

$$\frac{r_k}{r_s} \approx 1 - \frac{s}{r_s}. \quad (19)$$

Jelikož funkce  $F(w)$  nemá v bodě 1 diferenciál ( $F(1) = F'(1) = 0$ ,  $F''(1) = \infty$ ), musíme limitní přechod  $r_k \rightarrow \infty$  provádět přímo v integrálu (14). Po substituci  $w' = 1 - q$  provedeme v integrandu přiblížení pro malá  $q$ :

$$F(r_k/r_s) \approx \int_0^{s/r_s} \left[\frac{3}{2}q\right]^{2/3} dq = \frac{3}{5} \left(\frac{3}{2}\right)^{2/3} \left(\frac{s}{r_s}\right)^{5/3}. \quad (20)$$

S uvážením této aproximace a limitního vztahu  $r_0/r_s \rightarrow 1$  dává rovnice (15) pro výšku stěnové vrstvy  $s$  skutečně vztah (10).

### c) Dutá válcová katoda, plazma uvnitř katody

Jde o případ analogický s předchozí úlohou. Anoda se nachází v ose duté válcové katody. Rychlost iontů a intenzita mají nyní kladný směr, což se projeví změnou znaménka u těchto veličin v rovnicích (11). Řešíme soustavu

$$\begin{aligned} \frac{1}{r'} \frac{d}{dr'} (r'E') &= n', & E' &= -\frac{dU'}{dr'}, \\ r'n'v' &= r_0', & v' &= E'^{1/2}. \end{aligned} \quad (21)$$

Uvedeme zde pouze průběh napětí:

$$U(r) = -r_0'^{2/3} r_s F\left(\frac{r}{r_s}\right), \quad F(w) \equiv \int_1^w \left(1 - \frac{1}{w'^{3/2}}\right)^{2/3} dw', \quad w > 1. \quad (22)$$

Poloměr stěnové vrstvy opět určuje transcendentní rovnice (15), resp. (18), tentokrát s funkcí  $F$  definovanou v předchozím vztahu.

### Numerické studium parametrů stěnové vrstvy plazmatu

Vztahy odvozené v předchozím paragrafu pro válcové uspořádání elektrod jsme numericky realizovali v prostředí MATLABu. Tloušťku stěnové vrstvy a průběh potenciálu v ní určuje funkce  $F(w)$ , definovaná ve vztazích (14) pro  $w < 1$  a (22) pro  $w > 1$ . Obr. 1 zachycuje graf funkce  $F(w)/w^{5/3}$ , vystupující v rovnici (18) pro poloměr stěnové vrstvy  $r_s$ . Pro  $w < 1$  (plazma vně válcové katody) nabývá tato funkce všech hodnot z intervalu  $(0, \infty)$ . Soustava rovnic (11) tak má řešení pro libovolný poloměr katody. Pro  $w > 1$  (plazma uvnitř duté katody) nabývá funkce v bodě  $w_{\max} \approx 3.8$  maxima, kterému odpovídá (v bezrozměrných jednotkách a při volbě referenčního bodu  $r_0 = r_s$ ) minimální poloměr duté katody  $r_{\min}$ , při kterém se ještě může vytvořit stěnová vrstva:

$$\frac{1}{r_{\min}^{5/3}} = \frac{F(w_{\max})}{w_{\max}^{5/3}} \approx 0.224, \quad r_k \geq r_{\min} \approx 2.46. \quad (23)$$

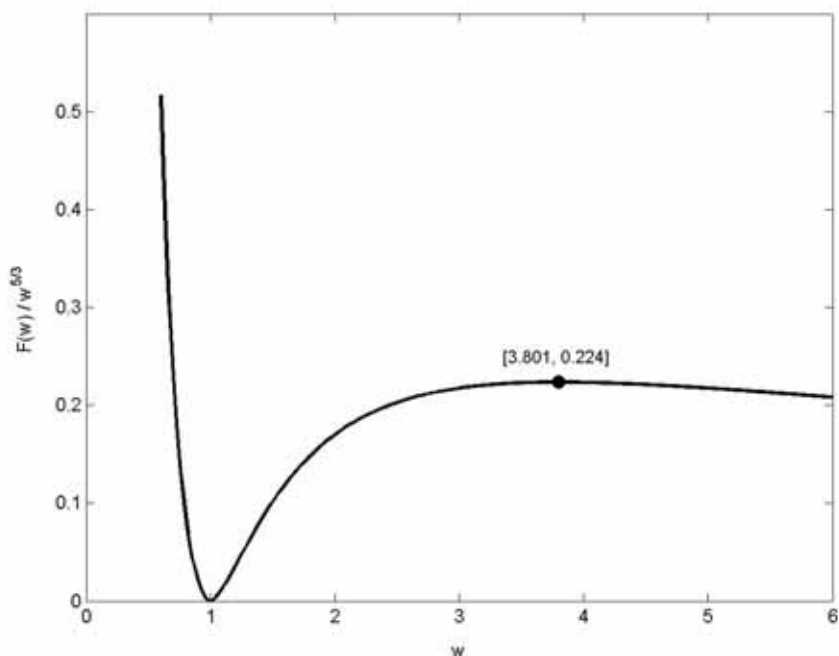
Tento výsledek je v souladu s intuitivní představou, že v dutině katody o příliš malém poloměru se nestačí vytvořit plně vyvinutý plazmatický „bulk“. Ve skutečnosti je nutné očekávat, že minimální poloměr  $r_{\min}$  bude ještě o něco vyšší, neboť v našem zjednodušeném modelu jsme ignorovali existenci přechodové oblasti, oddělující „sheath“ od „bulku“. Procesy v této přechodové oblasti – anglicky zvané presheath – určují okrajové hodnoty koncentrace iontů  $n_s$  a jejich počáteční rychlost  $v_s$ . Ve zjevném rozporu s realitou dostáváme z modelu  $n_s = \infty$ ,  $v_s = 0$  (viz. např. vztahy (9)), přičemž hodnota součinu  $|n_s v_s| \equiv J_s / e$  je stanovena definicí jako konečný vstupní parametr. Uspokojivá teorie presheathu pro srážkové plasma dosud neexistuje.

Rozměrové výpočty byly provedeny pro konkrétní experimentální podmínky v plazmatu, sloužící k depozici tzv. nanotubes [1]. Hodnota proudové hustoty  $J_0$  – řádově desítky ampér na metr čtvereční – byla odhadnuta na základě teoretických úvah platných pro rovinný případ, přičemž se tento odhad dobře shodoval s hodnotou skutečně naměřenou. Při pohybu iontů ve stěnové vrstvě nebyla pro jednoduchost uvažována závislost střední volné dráhy iontů na jejich energii.

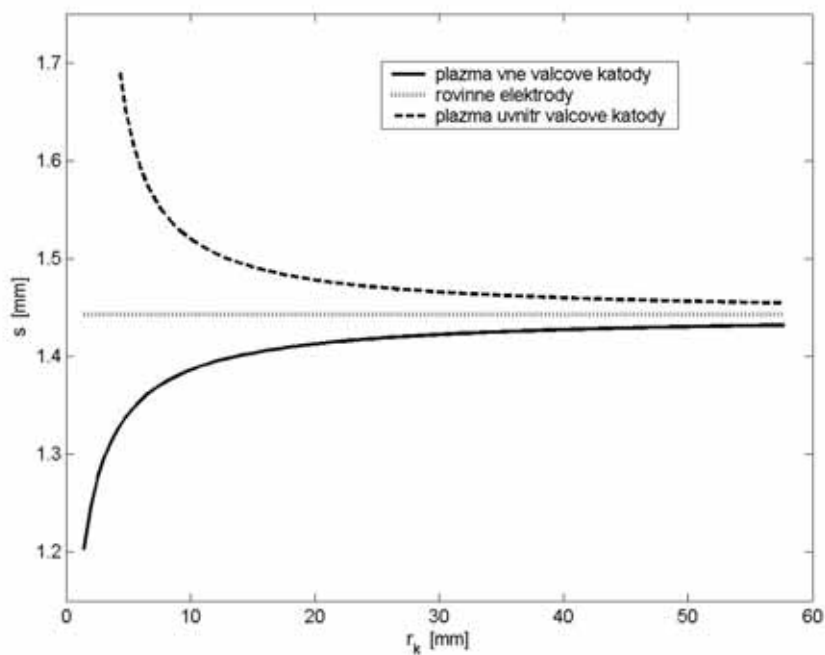
Pro depozici tenkých vrstev jsou důležité zejména hodnoty veličin těsně u substrátu – katody. Jako ukázkou těchto výpočtů uvádíme průběh tloušťky sheathu  $s$  (obr. 2) a elektrické intenzity  $E$  (obr. 3) v závislosti na poloměru  $r_k$  válcové katody. Obě tyto veličiny jsou vyznačeny i pro případ

rovinných elektrod. Obrázek 4 zachycuje závislost tloušťky sheathu a elektrické intenzity na proudové hustotě pro případ rovinné geometrie.

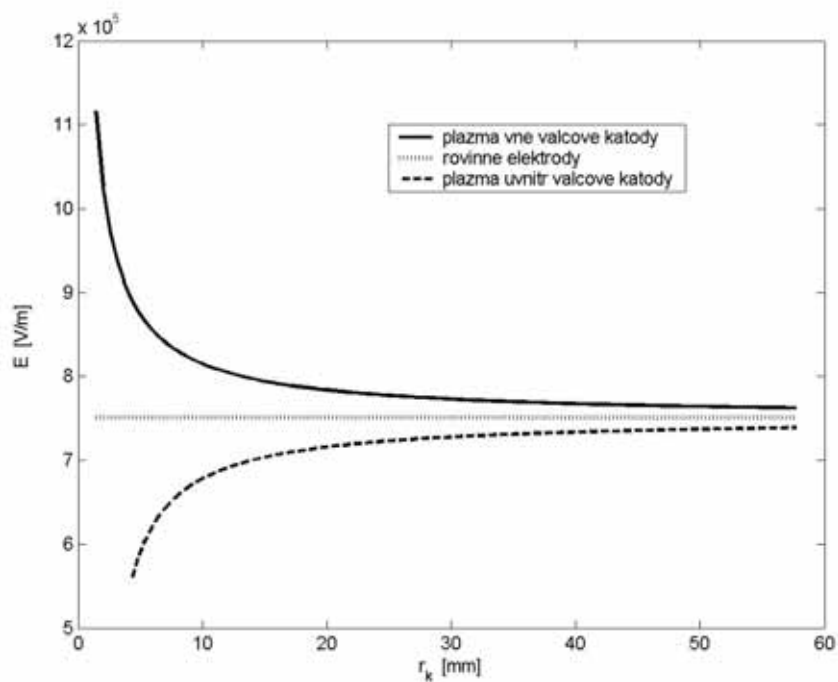
Odladěné programy umožňují určit další charakteristiky plazmatu ve stěnové vrstvě s válcovou i rovinnou symetrií, a pro dosažení požadovaných parametrů optimalizovat experimentální podmínky. Např. pro plazmatické ošetřování povrchů může být významný tok energie na substrát přenášený ionty, pro uspořádaný růst nanotubes zase intenzita elektrického pole v jejich okolí.



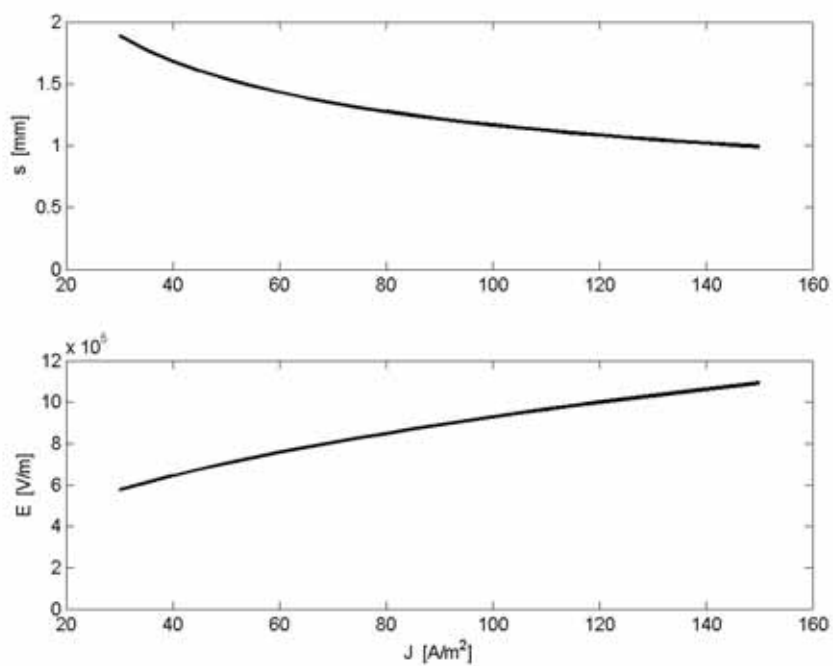
Obr. 1 Graf funkce z pravé strany rovnice (18)



Obr. 2 Závislost šířky sheathu na poloměru katody



**Obr. 3** Závislost intenzity na poloměru katody



**Obr.4** Závislost šířky sheathu a intenzity pole na hustotě proudu výboje

### Poděkování

Práce je podpořena z grantu MSM 124100004.



**Literatura:**

- [1] J. Blažek Špatenka, P., Ch. Taeschner, A. Leonhardt, Diamond & Related Materials 13/3 (2004), 503-506
- [2] Ch. Täschner, F. Pacal, A. Leonhardt, P. Spatenka, R. Kaltofen and A. Graff, Synthesis of aligned carbon nanotubes by DC plasma-enhanced hot filament CVD, Plasma Source Science and Technol. – v tisku
- [3] V.A. Godyak, N. Sternberg, IEEE Trans. Plasma. Sci. 18 (1990) 159.
- [4] M.A. Lieberman, A.J. Lichtenberg: Principles of plasma discharges and materials processing. John Wiley & Sons (1994)

**Kontakt:**

Josef Blažek  
Katedra fyziky, Pedagogická fakulta  
Jihočeská univerzita  
Jeronýmova 10, 371 15 České Budějovice  
E-mail: bla@pf.jcu.cz

Petr Špatenka  
Katedra materiálů  
Technická univerzita Liberec  
Hájkova 6, 461 17 Liberec  
E-mail: petr.spatenka@vslib.cz