

## Генерация высокоионизованной металлической плазмы анодным испарением в сильноточной импульсной дуге с самонакаливаемым катодом

*Н.В. Гаврилов<sup>1,2</sup>, Д.Р. Емлин<sup>1,\*</sup>, А.С. Каменецких<sup>1</sup>*

<sup>1</sup>*Институт электрофизики УрО РАН, Екатеринбург, Россия*

<sup>2</sup>*Уральский федеральный университет, Екатеринбург, Россия*

*\*erd@iep.uran.ru*

**Абстракт.** Приведены результаты экспериментальных исследований импульсного разряда с самонакаливаемым катодом и испаряемым анодом при токах 20–200 А, длительности импульсов ~0.6–0.9 мс и среднем токе ~10–20 А. Измерена температура электронов в плазме и оценена величина анодного падения потенциала. Получены зависимости средних и амплитудных значений скорости осаждения паров алюминия и плотности ионного тока из плазмы от амплитуды тока разряда для импульсно-периодического режима с постоянным средним током разряда.

**Ключевые слова:** Импульсная дуга, самонакаливаемый катод, анодное испарение, осаждение пленок

### 1. Введение

Разряд с испаряемым анодом существует как в самостоятельной, так и несамостоятельной формах и реализован с использованием различных типов катодов в паровой и парогазовой среде. Известными разновидностями такого разряда являются дуга с термоэмиссионным катодом (ТК) в парах металла [1], дуга с ТК в смеси паров металла с газом [2], дуга с катодными пятнами на холодном электроде в парах металла [3], дуга с самонакаливаемым катодом в потоке газа и парах металла [4, 5]. В исследованиях разряда с испаряемым анодом и ТК [2] было показано, что изменение состава рабочей среды разряда способно приводить к кардинальному изменению его характеристик. Однако, в самостоятельном разряде с самонакаливаемым полым катодом (СНПК), в полость которого подается инертный газ, испарение анода не оказывает определяющего влияния на процессы в катодной части разряда даже в сильноточных режимах с плотностью мощности на аноде до  $10^5$  Вт/см<sup>2</sup> [5]. Разряд с СНПК, через катодную полость которого прокачивается инертный газ, а в разрядный промежуток подается химически активный газ, используется для синтеза пленок из бинарных соединений металлов с газом, таких как оксиды, нитриды [6].

Перспективы успешного применения разряда с испаряемым анодом для нанесения пленок определяются эффективностью генерации пара и степенью ионизации парового потока. Скорость испарения определяется мощностью нагрева, теплотой парообразования материала и потерями мощности посредством теплового излучения и теплопроводности. Мощность, выделяющаяся на аноде разряда, прямо пропорциональна току разряда и зависит от электронной температуры  $T_e$  и анодного падения потенциала  $U_a$ , которые меняются в функции тока разряда. Так, в непрерывном сильноточном разряде с СНПК с ростом тока от 400 до 750 А величина  $U_a$  менялась от –2 до –16 В, а  $T_e$  возрастала с 3 до 8 эВ [5]. В таком разряде отрицательное анодное падение поддерживает постоянство анодного тока и не вносит вклада в нагрев анода. На величину потока паров влияет также давление газа, которое определяет величину коэффициента молекулярной диффузии. Для сохранения устойчивости разряда с ростом тока поток газа через полость СНПК необходимо увеличивать.

Представляет интерес исследование параметров плазмы и эффективности генерации паров в импульсно-периодическом режиме горения разряда (ИПР) при неизменном потоке газа. Стабильное горение такого разряда в условиях нехватки газа и остывания катода в паузе между импульсами обеспечивается повышением напряжения горения разряда [7]. С ростом плотности электронного потока и ионизирующей способности электронов можно ожидать

повышения степени ионизации паров и доли ионного тока в потоке частиц из плазмы в течение импульса тока.

Однако, средние значения скорости испарения, ионного тока и степени ионизации паров в ИПР сильноточного разряда будут зависеть от динамики тепловых процессов на аноде и параметров ИПР. Хотя импульсная плотность мощности на аноде разряда с СНПК (до  $10^5$  Вт/см<sup>2</sup> [5]) недостаточна для реализации режима, при котором большая часть энергии расходуется на испарение [8], сравнительная оценка средней скорости испарения в непрерывном режиме и ИПР, в котором имеет место эффект импульсного нагрева поверхности, представляет определенный интерес. Несомненным достоинством ИПР разряда является возможность регулировки скорости осаждения покрытий изменением скважности импульсов.

В настоящей работе приводятся результаты измерения параметров плазмы импульсного разряда с СНПК и испаряемым анодом при амплитуде тока разряда до 200 А, длительности импульса до 1 мс и среднем токе разряда 12–16 А. Измерены зависимости импульсных и средних величин плотности тока ионов и скорости осаждения покрытий от амплитуды тока в ИПР с постоянным средним током. Даны оценки динамики импульсного нагрева и остывания расплава металла в тигле. Оценены степень ионизации паров и соотношение концентраций газовых и металлических ионов в плазме.

## 2. Методика

Эксперименты проводились в электродной системе дуги низкого давления (рис. 1а) с СНПК из TiN (1) и теплоизолированным графитовым или молибденовым тиглем (2) с апертурой диаметром 14–20 мм и массой в 20–30 г, в который загружалась навеска из испаряемого металла (Al, 4 г). Дуговые электроды были установлены соосно на расстоянии 250 мм. Стабильное горение непрерывного разряда в отсутствие пара с током до 16 А обеспечивалось при потоке Ar через катодную полость 120 см<sup>3</sup>/мин и давлении в промежутке ~0.45 Па. Пленки Al осаждались на подложку (3), установленную на расстоянии 100 мм от тигля. В ИПР разряда постоянство величины среднего тока разряда  $I_{av} = I_m \cdot f \cdot t$  поддерживалось путем изменения амплитудного тока  $I_m$  в пределах 50–200 А, частоты повторения  $f$  – 350–100 Гц и длительности импульсов тока  $t = 0.5$ –0.9 мс. Для облегчения зажигания и ускорения развития импульсного разряда в электродной системе поддерживался непрерывный разряд с током 2 А.

Температура электронов, потенциал плазмы и плавающий потенциал зонда в плазме измерялись зондовыми методами. Сложность зондовых измерений в сильноточных разрядах с СНПК обусловлена отличием распределения электронов по скоростям от максвелловского и существовании в плазме потока быстрых электронов с энергией ~10–20 эВ [4]. Сканированием потенциала одиночного зонда в течение импульса были получены зондовые характеристики, подобраны аппроксимирующие функции, двойным дифференцированием которых был определен потенциал плазмы относительно анода, равный анодному падению потенциала. Плавающий потенциал зонда относительно плазмы  $\Phi_{pp} = \Phi_{pa} - U_a$  определялся разностью между измеренной величиной потенциала зонда относительно анода  $\Phi_{pa}$  и анодного падения потенциала  $U_a$ . Приближенная оценка температуры электронов проводилась с использованием соотношения  $e\Phi_{pp}/T_e \sim \ln[0.77(M/m)^{1/2}]$  [9], где  $M/m$  – отношение масс иона и электрона,  $k$  – постоянная Больцмана. Для плазмы в парах Al  $\Phi_{pp} \sim 5.1 \cdot T_e$ . Измерения проводились в точке, отстоящей от тигля по оси и по радиусу на 20 мм.

Плотность ионного тока из плазмы определяли по величине тока насыщения ионов на отрицательно смещенный (–100 В) плоский зонд (4, рис 1а) диаметром 20 мм. Полный ток ионов из плазмы измерялся в цепи цилиндрического электрода (Ø160 мм), внутри которого

размещалась разрядная система. Скорость испарения Al контролировали по линии атома AlI (396.15 нм) в спектре оптического излучения плазмы с использованием спектрометра HR2000 (Ocean Optics). Скорость осаждения покрытий оценивали, исходя из толщины покрытия, измеренной методом шарового истирания на приборе Calotest, и времени его осаждения.

### 3. Результаты

Форма осциллограмм тока разряда  $I_d$  и напряжения горения разряда  $U_d$  в Ar и смеси Ar и паров Al близка к прямоугольной, тогда как для осциллограмм ионного тока  $I_i$  характерен быстрый рост на фронте импульса, а затем быстрый спад тока, причем для сильноточного разряда в газе ионный ток уменьшается многократно (рис. 1б). Различие в характере изменения тока можно объяснить влиянием роста давления паров в течение импульса.

Вольтамперные характеристики ИПР разряда являются растущими (рис. 1в), величина напряжения горения при максимальных токах достигает 110–160 В, при одинаковых токах разряда напряжения горения разряда в газе и парогазовой смеси различаются на 40–60 В.

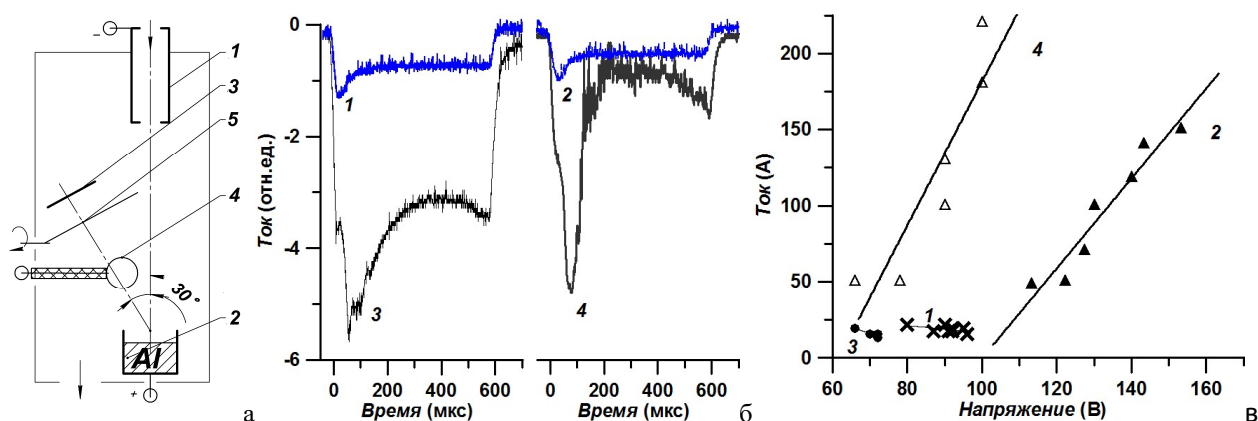


Рис. 1. (а) – схема эксперимента: 1 – катод, 2 – анод-тигель, 3 – подложка, 4 – зонд, 5 – заслонка; (б) – осциллограммы тока ионов в Ar (2, 4) и парах Al (1, 3). Ток 1, 2 – 50 и 40 А, 3, 4 – 170 и 160 А; (в) – ВАХ разряда 1, 3 – в DC, 2, 4 – в ИПР режимах. 1, 2 – в аргоне, 3, 4 – в парах алюминия.

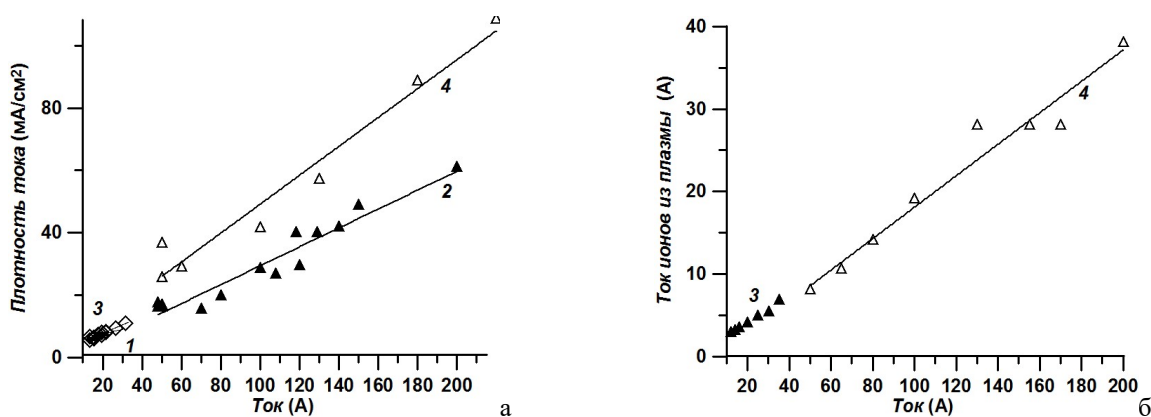


Рис.2. Зависимость импульсной плотности тока ионов на плоский зонд (а); и полного ионного тока  $I_i$  из анодной плазмы от тока разряда  $I_d$  (б). 1, 3 – в DC, 2, 4 – в ИПР режимах. 1, 2 – в аргоне, 3, 4 – в парах Al.

Плотность ионного тока на зонд, размещенный по оси разряда на расстоянии от тигля 40 мм, линейно возрастает с ростом  $I_d$  до  $0.1 \text{ А/см}^2$  при токе 200 А (Рис. 2а). Полный ионный ток из плазмы составляет до 20% от  $I_d$  (Рис. 2б). Скорость осаждения Al покрытия при постоянном среднем токе ИПР разряда, равном 10 А, линейно увеличивается с ростом  $I_d$  (Рис. 3).

Зависимость плавающего потенциала зонда относительно анода  $\Phi_{pa}$ , измеренная вблизи тигля, и полученная дифференцированием зондовых характеристик зависимость потенциала плазмы  $U_a$  представлены на Рис. 4 в функции тока  $I_d$ . Электронная температура  $T_e$  оценивалась, исходя из разности  $\Phi_{pp} = \Phi_{pa} - U_a$ . Используя значения  $\Phi_{pp}$ ,  $T_e$ , вольтова эквивалента  $V_v$  и мощности, выделяющейся на аноде  $W$ , приведены в Табл. 1. Величина  $V_v$  рассчитывалась из соотношения  $V_v = (U_a + 2kT_e/e + \phi/e)$  [5], где  $\phi$  – работа выхода материала анода (~4 эВ для Al). Мощность нагрева тигля  $W$  определялась произведением  $I_d$  и  $V_v$ . При изменении тока  $I_d$  в пределах 50–200 А положительное анодное падение возрастает с 1.5 до 9.5 В, электронная температура увеличивается от 3.8 до 5.2 эВ. Согласно проведенным расчетам при 4-х кратном росте тока  $I_d$  тепловая мощность на аноде увеличивается в 7.3 раза.

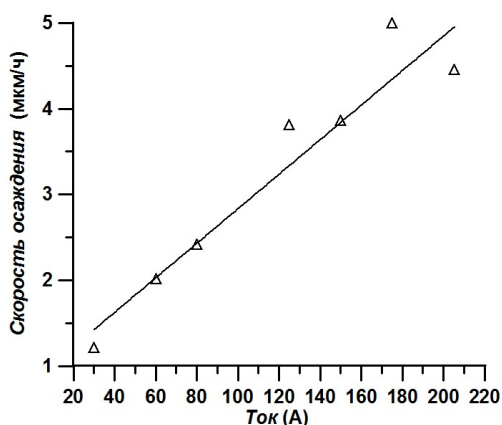


Рис. 3. Зависимость скорости осаждения алюминия от импульсного тока разряда. Средний ток разряда 10 А. Расстояние до тигля 10 см.

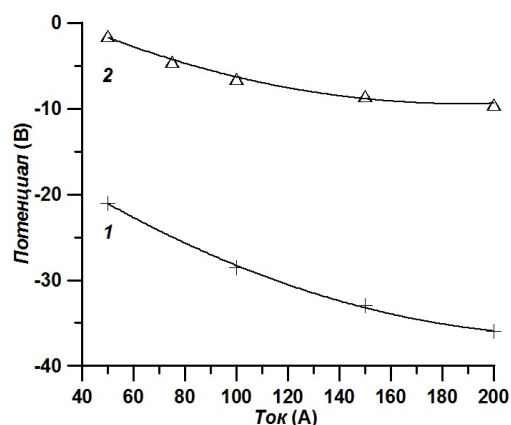


Рис. 4. Зависимость 1 – плавающего потенциала зонда  $\Phi_{pa}$  и 2 – потенциала плазмы  $U_a$  от импульсного тока разряда. Зонд вблизи тигля-анода.

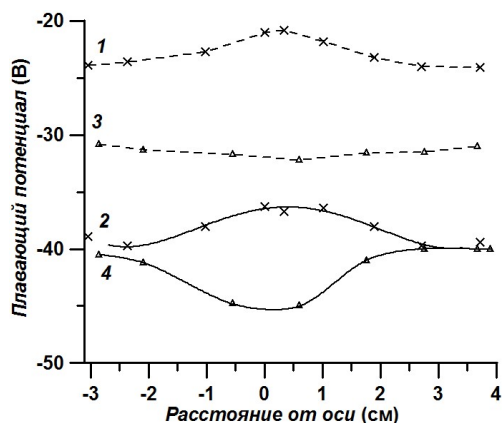


Рис. 5. Радиальные распределения потенциала зонда  $\Phi_{pa}$ . Ток 1, 3 – 50 А, 2, 4 – 200 А. Удаление от тигля: 1, 2 – 1 см, 3, 4 – 16 см. Средний ток 10 А.

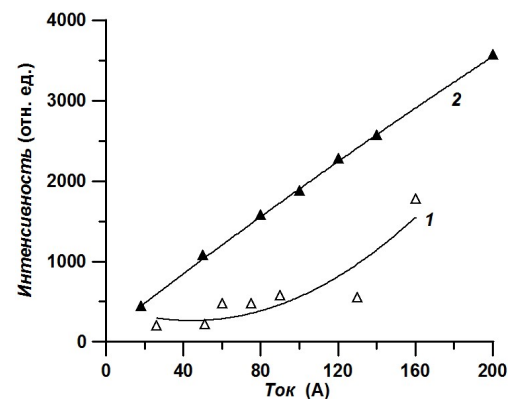


Рис. 6. Зависимость интенсивности линии АII (396.15 нм) от амплитуды тока. 1 – средний ток 12 А, 2 – 18 А.

Результаты измерений плавающего потенциала зонда свидетельствуют о наличии продольного (0.6 В/см) и радиального (1.6 В/см) градиентов потенциала в плазме (Рис. 5).

Рост усредненных значений амплитуды линии АII (396.15 нм) в спектре излучения плазмы с увеличением  $I_d$  (Рис. 6) обусловлен повышением мощности нагрева с ростом  $U_a$  и  $T_e$ , и, соответственно, мощности нагрева. Для оценки повышения эффективности испарения в результате импульсного нагрева поверхности и уменьшения доли энергии, отводимой в объем, требуются более детальные исследования.

**Таблица 1.** Параметры плазмы и мощность, выделяемая на аноде разряда.

$I_d, A$	$U_a, B$	$\Phi_{pa}, B$	$(\Phi_{pa} - U_a), эВ$	$T_e = (\Phi_{pa} - U_a)/5.1, эВ$	$V_v, B$	$W, Вт$
50	1.5	21	19.5	3.8	13.1	655
100	6.5	28.5	22.5	4.4	19.3	1930
150	8.5	33	24.5	4.8	22.1	3315
200	9.5	36	26.5	5.2	23.9	4780

#### 4. Обсуждение

Изменение температуры поверхности вещества при кратковременном высокоэнергетическом воздействии с плотностью мощности  $F$  без учета потерь мощности на испарение приближенно описывается соотношением [10]:

$$\Delta T = (2F / \lambda) \cdot (a\tau / \pi)^{1/2}, \quad (1)$$

где  $a$  — коэффициент температуропроводности  $a = \lambda/\rho c$ ,  $\rho$  — плотность,  $c$  — удельная теплоемкость металла,  $\lambda$  — теплопроводность,  $\tau$  — длительность импульса,  $\pi = 3.14$ . При  $F = 5 \text{ кВт/см}^2$  и  $t_o \sim 1 \text{ мс}$  приращение температуры составляет  $\sim 75 \text{ }^\circ\text{C}$ , что обеспечивает увеличение давления насыщенных паров на порядок величины при средней температуре тигля  $1200 \text{ }^\circ\text{C}$  [11]. Температура собственно тигля в течение цикла изменения тока разряда меняется незначительно вследствие его значительно большей теплоемкости по сравнению с навеской испаряемого вещества. В паузе температура навески уменьшается до исходной за время, близкое к времени импульсного нагрева. Скорость распространения паров определяется тепловой скоростью испаренных атомов, которая при температуре тигля  $\sim 1200 \text{ }^\circ\text{C}$  для атомов Al составляет  $\sim 1.16 \cdot 10^5 \text{ см/с}$ . Испаренные атомы достигают поверхности держателя образцов за время  $\sim 0.13 \text{ мс}$ , следовательно, динамика изменения давления пара в объеме определяется, главным образом, процессами нагрева и охлаждения.

Для оценки степени ионизации плазмы используем уравнение баланса скоростей генерации и ухода ионов из плазмы:

$$0.6 \cdot en_i v_b S = en_0 n_e \sigma v_e V, \quad (3)$$

где  $n_0$  — плотность нейтральных молекул,  $n_i$ ,  $n_e$  — концентрация ионов и электронов в плазме,  $v_e$  — скорость электронов,  $v_b$  — боровская скорость  $v_b = (T_e/M_i)^{1/2}$ ,  $V/S$  — характерный размер плазменного образования,  $M_i$  — масса иона,  $\sigma$  — сечение ионизации электронным ударом,  $e$  — заряд электрона. Степень ионизации плазмы  $n_i/n_0 = n_e \sigma v_e V / (0.6 \cdot v_b \cdot S)$ , которая определяется ионизирующей способностью потока электронов с параметрами  $n_e \sigma v_e$  и скоростью ухода ионов из плазмы, линейно увеличивается с ростом  $I_d$ .

Долю ионов газа в потоке ионов из плазмы оценим, исходя из упрощенной модели с однородным распределением частиц газа и металла в объеме. Тогда соотношение скоростей ионизации частиц пара и газа будет определяться величиной:

$$n_g n_e \sigma_g v_e / (n_m n_e \sigma_m v_e) = n_g \sigma_g / n_m \sigma_m, \quad (4)$$

то есть, произведением отношения концентраций атомов газа  $n_g$  и металла  $n_m$  в объеме и отношения сечений ионизации этих частиц электронным ударом  $\sigma_g/\sigma_m$ . Большие значения  $\sigma_m$  в области малых энергий электронов обеспечивают преимущественную ионизацию металла в парогазовой смеси. Так, для быстрых электронов с энергией  $\sim 20 \text{ эВ}$ , присутствующих в плазме сильноточного разряда с СНПК [4], отношение величин поперечного сечения ионизации  $\sigma_{Al}/\sigma_{Ar} \sim 10$  [12]. Соответственно, при  $n_g \sim n_m$  вероятность ионизации атомов металла и доля

ионов металла в ионном потоке будет значительно выше, чем для газовых частиц. Поэтому, можно ожидать, что ток газовых ионов в общем потоке ионов из плазмы дуги с испаряемым анодом будет кратно меньше, чем ток ионов из плазмы Ag дуги.

## 5. Заключение

Сильноточный импульсный разряд с СНПК и испаряемым анодом устойчиво функционирует при токах до 200 А, длительности импульсов до 1 мс и среднем токе 12–18 А. Полный ток ионов из плазмы достигает 20% от тока разряда, что примерно вдвое выше отношения этих токов в вакуумной дуге. Рост скорости осаждения Al покрытий в импульсно-периодическом режиме при увеличении амплитудного тока и сохранении среднего тока разряда обусловлен повышением мощности нагрева с ростом температуры электронов и анодного падения потенциала.

## Финансирование работы

Работа частично выполнена в рамках гос. задания ИЭФ УрО РАН №122011200365-3 и при частичной поддержке Министерства науки и высшего образования Российской Федерации (Программа развития Уральского федерального университета “Приоритет-2030”, проект 4.38).

## 6. Литература

- [1] G. Musa, H. Ehrich, and M. Mausbach, Studies on thermionic cathode anodic vacuum arcs, *J. Vac. Sci. Technol. A.*, vol. **12**, 2887, 1994, doi: 10.1116/1.578961
- [2] А. Г. Борисенко, В. А. Саенко, В. А. Рудницкий, Несамостоятельный дуговой разряд в смесях паров металла с газом, *ТВТ*, **37**(1), 5, 1999.
- [3] H. Ehrich, B. Hasse, M. Mausbach, K. G. Müller, The anodic vacuum arc and its application to coating, *J. Vac. Sci. Technol. A*, vol. **8**, 2160, 1990, doi: 10.1116/1.577033
- [4] V.M. Nerovnyi, A.D. Khakhalev, Hollow cathode arc discharge as an effective energy source for welding processes in vacuum, *J. Phys. D: Appl. Phys.*, vol. **41**, 035201, 2008, doi: 10.1088/0022-3727/41/3/035201
- [5] В.С. Чередниченко, Б.И. Юдин. *Вакуумные плазменные электроды*. Москва: ИНФРА-М, 2022.
- [6] N.V. Gavrilov, A.S. Kamenetskikh, D.R. Emlin, P.V. Tretnikov, A.V. Chukin, Discharge System with a Self-Heated Hollow Cathode and an Evaporating Anode in a Cusp Magnetic Field for Oxide Coatings Deposition, *Tech. Phys.*, **64**(6), 807, 2019, doi: 10.1134/S1063784219060082
- [7] N.V. Gavrilov, D.R. Emlin, Thermal Regime of Self-Heated Hollow Cathode in a Low-Pressure High-Current Pulsed-Periodic Discharge, *Tech. Phys.*, **62**(11), 1750, 2017, doi: 10.1134/S1063784217110081
- [8] E.G. Gamaly; A.V. Rode; B. Luther-Davies, Ultrafast ablation with high-pulse-rate lasers. Part I: Theoretical considerations, *J. Appl. Phys.*, vol. **85**, 4213, 1999, doi: 10.1063/1.370333
- [9] Yu. Raizer. *Gas Discharge Physics*. Springer-Verlag, Berlin, 1991.
- [10] W. Hartmann, V. Dominic, G. F. Kirkman, M. A. Gundersen, An analysis of the anomalous high-current cathode emission in pseudospark and back-of-the-cathode lighted thyatron switches, *J. Appl. Phys.*, vol. **65**, 4388, 1989, doi: 10.1063/1.34343
- [11] R.E. Honig, Vapor Pressure Data for the More Common Elements, *RCA Review*, vol. **18**, 195, 1957.
- [12] Д.Г. Головач, А.Н. Дроздов, В.И. Раховский, В.М. Шустряков, Измерение поперечного сечения ионизации атомов алюминия электронным ударом, *Измерительная техника*, том **51**, № 6, 1997.