

# 射频自体辉光放电辅助电子束沉积的放电特性 与离子分布研究

## Study on Discharge Characteristics and Ion Distribution of RF Autologous Glow Discharge Assisted Electron Beam Deposition

中航工业空气动力研究院 宋义民

**[摘要]** 为了克服电子束蒸镀技术的不足,提高蒸镀薄膜与基体的膜基结合力,通过增加射频线圈的方法,在电子束蒸镀沉积过程中实现了射频自体辉光放电。研究了放电参数对射频辉光放电反射功率的影响规律,结果表明采用3匝直径82mm的射频线圈条件下,最佳放电距离为100cm。电子束流在160mA以上时,起辉较容易,但是电子束流大于200mA后,蒸镀的膜层容易脱落。通过静电探针分析发现,放电产生的等离子体中离子密度高于 $1.0 \times 10^{10} \text{atom/cm}^3$ ,射频功率的增大提高了真空室中各个位置处的离子密度,尤其是线圈中心位置,导致了真空室中离子密度径向位置的不均匀性。当射频功率为170W时,各位置的离子密度急剧增加。

**关键词:** 射频辉光放电 电子束蒸镀 静电探针 离子密度

**[ABSTRACT]** In order to overcome the shortcomings of electron beam evaporation technique and improve the adhesion strength between the film and substrate, RF autologous glow discharge is realized during the electron beam evaporation deposition process by placing a radio-frequency coil. The discharge parameters to the reflected power are studied. Results show that the discharge distance of 100mm is more appropriate parameters when the RF coil is 3-turn and its diameter is 82mm. The fluency of electron beam is above 160mA, the discharge is easier to happen, but when the electron beam is greater than 200mA, the film would be to fall off. From the experiment measurements of probe, it can be found that the ion density of the discharged plasma is more than  $1.0 \times 10^{10} \text{atom/cm}^3$ , moreover the increase of RF power causes the enhancement of ion density at various locations in the vacuum chamber, especially coil center. When RF power is 170W, the ion density of each location increases dramatically.

**Keywords:** RF glow discharge Electron beam evaporation Electrostatic probe Ion density

电子束蒸镀技术作为一种比较成熟且常用的真空沉积技术,采用高能电子束来加热待沉积块体材料并使其蒸发,然后沉积到衬底表面形成膜层,具有纯度高、成膜速度快等优点,能够制备质量优良的金属及陶瓷涂层<sup>[1-3]</sup>。在航空热障防护涂层<sup>[4]</sup>、轻合金防腐蚀涂层制备<sup>[5]</sup>方面具有广泛的应用潜力。

膜层结合力低是电子束蒸镀技术存在的一个主要问题。为了克服这一缺点,国际上广泛采用外加离子源的方法,如离子束辅助沉积(IBAD)技术来提高膜层与基体之间的结合力<sup>[6-8]</sup>。但是由于常用的离子源离子通量较小,与电子束蒸镀产生的粒子在密度上有3~4个数量级的差距<sup>[9]</sup>,而根据离子束增强沉积理论,只有入射离子/原子比达到2%~10%才具有明显的效果<sup>[10]</sup>。因此,为充分发挥离子束轰击作用,必须降低电子束蒸镀的速率,而这使电子束蒸镀成膜速度快的优点得不到充分的体现。同时外加的离子源可能在膜层中引入杂质元素而影响膜层的质量,为了克服这种局限性,发展出了自体等离子体辅助沉积方法。美国西南物理研究院的Wei等提出了一种基于电子束轰击的自体金属等离子体形成方法,将W灯丝电子枪安装在蒸发源上方来加热待蒸发材料,同时通过Ar气辅助,电子束与金属蒸汽相互作用形成金属等离子体。但是这种方法由于电子束不能偏转与聚焦,很难获得高的等离子体密度与沉积速率<sup>[11]</sup>。德国的T.Modes等在电子束蒸镀的同时在坩埚上方辅助阴极弧放电,利用高熔点阴极的热电子发射效应来形成真空弧等离子体,能获得 $10 \sim 100 \text{A/cm}^2$ 的放电电流密度。但是,该方法要求阴极材料必须为高熔点的导电材料。对于低熔点材料和非导电材料,这种方法无法形成真空弧等离子体<sup>[12]</sup>。

而射频感应耦合放电方式具有结构简单,可以在低气压下( $10^{-3} \sim 10^{-1} \text{Pa}$ )产生较高密度的等离子体( $10^{11} \sim 10^{12} \text{atom/cm}^3$ )的突出优点,同时射频感应耦合放电过程属于无电极放电过程,这样就防止了因放电电极发生溅射而引起的等离子体污染现象<sup>[13-15]</sup>。因此,射频

感应耦合方式是实现电子束蒸发自体等离子体辅助沉积的理想方式。本文在原有设备基础上,通过附加射频线圈,产生了金属等离子体,实现了自体等离子体干预电子束蒸发镀膜过程;并采用静电探针方法对射频放电的产生的产生条件与离子的空间分布进行了研究,探索了放电的最佳工艺参数,为提高电子束蒸镀所获膜层之间的结合力提供了一种新的方案。

## 1 试验过程

### 1.1 试验原理与装置

图1为设计的电子束蒸发镀膜系统结构示意图,电子束蒸镀工作在 $10^{-2}\sim 10^{-4}\text{Pa}$ 的真空条件下,在这种气压条件下很难产生辉光放电。但是,由于电子束蒸镀过程能形成很高密度定向运动的金属蒸汽,这样在坩埚正上方一定范围内金属蒸汽的密度大于真空室的平均值,这部分的气压也会大于真空室其他地方的气压,局部范围内将会形成适合于辉光放电的气压范围,从而在射频感应激励下产生自己辉光放电等离子体。本装置的内部可以分成3个区域:(1)以蒸发源为中心的蒸发区;(2)以线圈为中心的离化区;(3)以基板为中心,使生成的离子加速,并使其沉积在基板上的离子加速区。通过分别调节蒸发源功率、线圈的激发功率、基板偏压,可对3个区域进行独立的控制,由此可以在一定程度上改善膜层的性能。

试验采用的射频感应耦合放电装置为电感耦合线圈,其直径为82mm,匝数为3匝。线圈由外径为6mm的无氧铜管,可通水冷却,高度可通过深入到设备中的铜管的长度进行调整。离化线圈通过法兰系统固定到

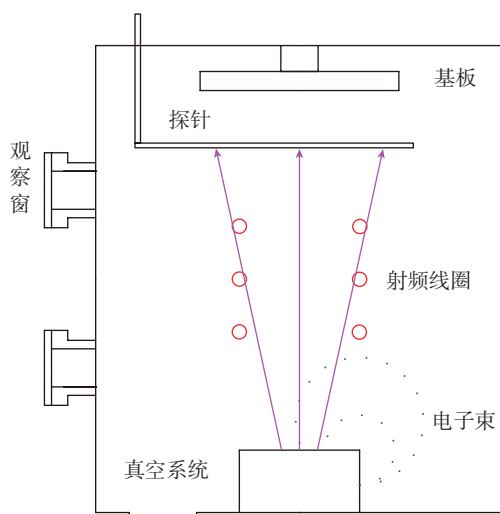


图1 射频感应辉光放电辅助电子束蒸镀系统结构示意图

Fig.1 Structure of RF inductively glow discharge assisted electron beam deposition system

电子束蒸发镀膜设备上面。

试验采用的蒸镀材料为纯钛,熔点为 $1668^{\circ}\text{C}$ 。

射频放电电流及离子密度通过静电探针测量获得,其原理如下节所示,记录各位置处的离子流探针的电压,来得到离子密度在径向的分布规律。

### 1.2 静电探针法测量原理

静电探针是常用的等离子体的诊断方法之一。依据不同的用途,可以采用不同的探针进行诊断,图2为静电探针测量装置的原理图,通过测量电阻 $R$ 两端的电压,计算电源回路中的电流。在没有产生等离子前,离子流探针测量电路处于断路状态,测量电阻 $R$ 两端没

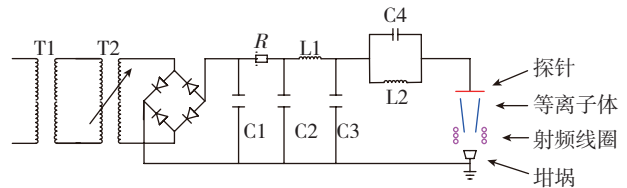


图2 静电探针测量原理图

Fig.2 Diagram of electrostatic probe measurement system

有电压信号,示波器读数为零;当真空室内产生放电现象,金属蒸汽被离化,产生金属等离子体时,此时探针测试电路处于通路状态,示波器两端有电压信号,由于本试验所用的测试电路属于串联电路,电路中电流处处相等。由式(1)和式(2)结合欧姆定律可以推导出单位时间单位截面积到达探针表面的等离子体密度 $n$ 。

由电量的计算公式:

$$q = I \cdot t, \quad (1)$$

根据电流的计算式:

$$I = n \cdot s \cdot v \cdot q, \quad (2)$$

由欧姆定律结合式(1)、(2)可得:

$$n = \frac{U}{R \cdot s \cdot v \cdot q}, \quad (3)$$

式中, $U$ 为探针测试系统中电阻 $R$ 两端的电压(mV); $R$ 为试验中所用的取样电阻( $\Omega$ ); $n$ 为探针表面单位体积内离子的密度(atom/cm<sup>3</sup>); $q$ 为一价正离子所带的电量(C); $v$ 为正离子的速度(m/s); $s$ 为探针面积(mm<sup>2</sup>)。

## 2 试验结果与讨论

### 2.1 射频放电等离子体的产生和表象

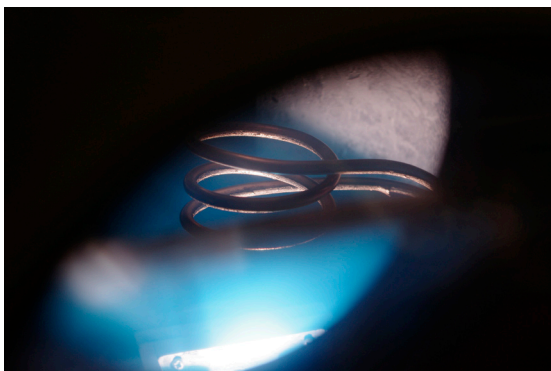
试验时,电子束加速高压为8kV,调节电子束束斑位置处在坩埚里靶材的位置,在调节过程中电子束束流不宜过大,防止电子束流击穿真空室内其他位置。当电子束束流增加到150mA以上时,坩埚中的金属已经完全熔化,由于受到电子束的冲击力,整个坩埚内熔化的

钛金属在不断地搅动。

不断调节射频电源输出功率,并调节匹配电容,射频功率增大到某一值时,射频线圈与金属钛原子产生放电(如图3所示)发出耀眼蓝光。



(a) 离化前



(b) 离化后

图3 离化前后的电子束蒸镀试验现象

Fig.3 Experimental phenomena of electron beam evaporation process before and after ionization

用肉眼观察发现,随着射频功率的增加,可以明显发现真空室内射频辉光放电的增强,真空室内蓝光由弱变强,刚开始位于真空室的坩埚与线圈下方产生放电,蓝光较弱。然后在线圈之间也产生了放电,蓝光的范围扩大。射频功率增加到最大时,整个真空室内蓝光最强,基板处于蓝光的包围之中。由此表明,电子束蒸镀时,通过在坩埚上方安置射频线圈,接入适当的射频功率,能够产生射频辉光放电,将部分金属蒸汽被离化生成金属等离子体,从而实现自体等离子辅助沉积过程。

## 2.2 放电距离对放电过程的影响

当一个螺旋线圈通以高频电流时,在它的空间会同时存在两种电场。第1种是由线圈两端的高频电位差建立的轴向电场 $E_z$ ,这是E型放电的电场;第2种是由放电室空间磁场变化产生的涡旋电场 $E_\theta$ ,即H型放电的电场。这两种电场的比例随线圈绕制方式的不同而变化。

对于顺序绕制的线圈,其两端的电场在轴向是均匀地变化的。一般情况下,在气体击穿以前, $E_z > E_\theta$ ,此时气体的击穿由 $E_z$ 来承担,其数值的大小完全由线圈的几何参量和圈数来确定。然而当放电建立后,空间电荷开始发展,在 $E_z$ 的作用下,电子作振荡运动会降低中心区域的 $E_z$ 值。因此,在放电进一步发展中, $E_z$ 的作用会减弱;随着放电的发展,放电功率的增大,高频电流也随之增加,磁场的作用就越来越大,于是由磁场感应的电场对放电的影响也增大,H型放电的性质才可能更加显现出来。

由以上分析可知,在射频感应放电初期,一般以E型放电为主。放电距离对放电过程的影响将是不可不考虑的一个重要因素。本试验中,我们将电子束流保持在180mA,记录了不同放电距离放电过程中的放电参数。

图4为不同放电距离条件下,射频输入功率与反射功率的关系,由图可知,在射频输入功率小于150W时,不同放电距离的反射功率均在20W以下。且反射功率均随着射频功率的增加而增加,当射频输入功率在400W附近时,放电距离140cm的反射功率达到了最大90W左右,而放电距离80cm也将近60W。

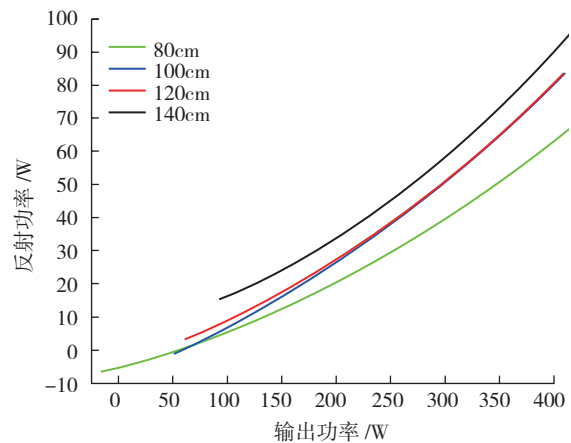


图4 不同放电距离条件下的射频功率与反射功率分布

Fig.4 RF power and reflected power distribution on different discharge distance

另外,不同放电距离所对应的最小维持放电功率也不同。放电距离为80cm时,最小维持放电功率为20W;随着放电距离的增大,最小维持放电功率增加,在放电距离为100cm和120cm时,最小维持放电功率分别为60W和95W;最小维持放电功率在放电距离为140cm时,达到最大为120W。

在试验中,放电距离的增加对最大射频功率的输入影响不大,放电距离80cm时,射频输入功率最大为380W;在其他3个放电距离,射频输入功率最大值分别

为 320W、360W 和 400W。

因此,为了增加耦合效率,减小反射功率,最佳放电距离应为 80cm。但是考虑到试验过程中电子束流比较大,靶材钛的熔点较高,在这种情况下会产生大量的热量,辐射到感应线圈上,另外射频功率较大时,线圈的趋附效应也会变得很明显。由图 4 可知,当放电距离 100cm 时,在射频功率较小时,反射功率和放电距离为 80cm 时相当;在较大射频功率时,反射功率比放电距离为 80cm 时稍大。综合各方面考虑,最佳放电距离定位 100cm。

### 2.3 电子束流对放电过程的影响

图 5 是采用放电距离 100cm,电子束流分别为 160mA、170mA、180mA 和 200mA 时,射频功率与反射功率之间的关系曲线。

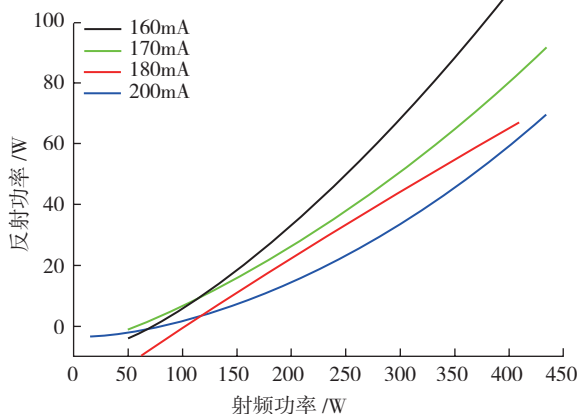


图5 不同电子束流条件下射频功率与反射功率分布

Fig.5 RF power and reflected power distribution on different electron beam intensity

在射频功率小于 100W 时,不同电子束流条件下的反射功率都为 0W,说明这时射频输入功率能够有效地耦合到等离子体负载中去。当射频功率在 225W 以下,通过调节匹配箱上的匹配电容,能够把射频电路中的反射功率降低到 40W 以下,射频辉光放电过程可以比较稳定地进行,没有发现放电过程突然熄灭的现象;随着射频功率的进一步增加,反射功率都是增加的趋势,但是,电子束流越大,反射功率增加的幅度越小,电子束流为 200mA,射频功率 400W 时,反射功率增加到 50W 左右;在相同情况下,电子束流 160mA 的反射功率则高达 90W,并且时常发生放电过程的熄灭现象,放电不稳定。因此电子束流应该保持在 200mA 以下,但是电子束流又不能过小,否则,射频反射功率加大。因此,在试验中合适的电子束流应该在 180mA 左右。

### 2.4 等离子体的空间分布

试验中,采用可移动探针对接坩上方径向的等离子体分布进行了研究。图 6 为距离坩坩 160cm 处,分别

距离射频线圈中心 1cm、4cm、7cm 和 10cm 的径向位置,在本底真空为  $2 \times 10^{-3}$ Pa,射频功率分别为 90W、120W、170W、210W 和 240W 情况下计算得到的离子密度分布。

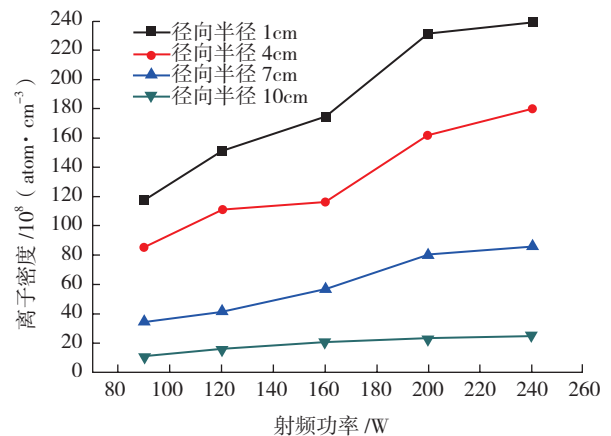


图6 不同径向位置处离子密度随射频功率的变化

Fig.6 Ion density fluctuations with RF power at different radial position

由图 6 可知,随着射频功率的增加,在径向的不同位置离子密度都有增加的趋势,其中径向半径 1cm 和 4cm 处,离子密度的增加较为明显,分别由初始的  $8 \times 10^9 \text{atom/cm}^3$  增加到  $1.7 \times 10^{10} \text{atom/cm}^3$  和  $1.2 \times 10^{10} \text{atom/cm}^3$  增加到  $2.4 \times 10^{10} \text{atom/cm}^3$ ;而在距离中心位置最远处的离子密度虽然有所增加,但增幅不是很明显。在射频功率 90W 时,中心位置处的离子密度大概是边缘位置的 8 倍多,随着射频功率的增大,当射频功率增加到 240W 时,中心位置处的离子密度是径向半径 10cm 处的 12 倍,这说明射频功率的变化对处于中心位置处的离子密度影响比边缘位置大,且射频功率越大,两者之间的差距也越大。离子密度在射频功率低于 170W 时,增加较为平缓。在射频功率为 170W,离子密度急剧增加。这可能与射频感应耦合等离子体的放电形式的转变有关。在气压比较低时,利用射频放电产生等离子体,通常有两种放电模式,他们是容性放电(简称 E 型放电)和感性放电(简称 H 型放电)。容性耦合放电发生在射频输入功率较少时,其特点是:发光较弱、电子密度较小和电子温度较高。当输入射频功率较大时,将会发生容性耦合放电向感性耦合放电的转变。感性耦合放电的特点是:发光较强和电子密度较大。

## 3 结论

为了克服电子束蒸镀技术存在的不足,提高蒸镀薄膜与基体的膜基结合力,从而扩大电子束蒸镀技术的应用范围。本文采用射频感应耦合方法在电子束蒸镀过

(下转第 66 页)

机构中去选择研发能力卓越的组织作为自己的合作伙伴。

#### 4 结束语

产学研合作既是企业赢得竞争优势的重要途径,也是高校、科研机构知识资源实现价值的途径。本文通过运用完全信息动态博弈模型,对大型客机的研制过程中产学研合作创新的模式进行了新研究。并得出结论:在大型客机的研制过程中,针对某一零组件关键技术的获取,技术研发成本、高校及科研机构的研发能力是企业选择合作模式及合作伙伴的影响因素。当技术研发投入成本巨大时,企业应倾向于技术交易合作模式;当选定全过程协作合作模式时,企业应倾向于选择研发能力出色的高校、科研机构作为合作者。以后还将对算法中的参数进行实证研究,以期更好把控选择依据进而提升大飞机产学研的合作绩效。

#### 参考文献

[1] 陈傲,张志宏. 中国大型客机研制的技术集成路径研究. 中国科技论坛,2008(12):79-82

[2] 黄强,杨乃定,董铁牛,等. 欧洲民用航空产业发展战略分析及给我们的启示. 航空制造技术,2008(1):60-63.

[3] Cohen W M. Nelson R R, Walsh J P. Links and impacts the influence of public research on industrial R& D. Management science, 2002(1): 1-23.

[4] Wright M, Clarysse B, Lockett A, et al. Mid-range universities' linkages with industry knowledge types and the role of intermediaries. Research policy, 2008( 8): 1205-1223.

[5] Este D P, Patel P. University- industry linkages in the UK: what are the factors underlying the variety of interactions with industry? Research Policy, 2007(9): 1295-1313.

[6] 田华杰,孙静,王换娥. 产学研合作模式的效果与问题思考. 生产力研究,2011(1): 93-94.

[7] 仲伟俊,梅姝娥,谢园园. 产学研合作技术创新模式分析. 中国软科学,2009(8): 174-181.

[8] 王文岩,孙福全,申强. 产学研合作模式的分类、特征及选择. 中国科技论坛,2008(5): 37-40

[9] 王娟茹,潘杰义. 产学研合作模式探讨. 科学管理研究, 2002(1): 25-27.

[10] 鲍新中,徐丹,王道平. 产学研合作收益分配的博弈分析. 数学的实践与认识, 2009,39(19): 76-83.

[11] 杨久香,罗东坤. 产学研合作的思想基础和演变趋势研究. 科技管理研究, 2010(24):104-106.

[12] 鲁若愚,傅家骥,王念星. 校企合作创新的属性演化及对分配方式的影响. 中国软科学, 2003(10):153-160.

[13] 刘浪,唐海军,陈仲君. Shapley 值在动态联盟利益分配博弈分析中的应用. 工业工程, 2006(9):118-121.

[14] 罗利,鲁若愚. 产学研合作对策模型研究. 管理工程学报, 2000(2):1-4.

(责编 亦菲)

(上接第 61 页)

程中实现了自体辉光放电。并对最佳放电参数进行了研究,结果表明在感应线圈直径 82mm,匝数 3 匝的情况下,最佳放电距离为 100cm,最佳电子束束流为 180mA。对轴向方向上的离子密度的研究结果表明,采用本方法可以产生离子密度高于  $1.0 \times 10^{10}$  atom/cm<sup>3</sup> 的等离子体。同时中间位置处的离子密度高于边缘位置的离子密度,且射频功率越大,两者之间的差距也越大。

#### 参考文献

[1] Shamala K S, Murthy L C S. Studies on optical and dielectric properties of Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> thin films prepared by electron beam evaporation and spray paralysis method. Materials Science and Engineering,2004,106(5) : 269-274.

[2] 田民波. 薄膜技术与薄膜材料. 北京: 清华大学出版社, 2006:442-443.

[3] Milton O. Materials Science of Thin Films. 北京: 世界图书出版公司,2006:121-123.

[4] 武颖娜,王冰,华伟刚,等. 热障涂层的研究和发展. 材料导报. 2002, 16 (8): 8-10.

[5] 戴达煌,周克崧,袁镇海,等. 现代材料表面技术科学. 北京: 冶金工业出版社,2004:404-405.

[6] Sergei V F. Microstructure features of wear-resistant titanium nitride coatings deposited by different methods. Thin Solid Films,2000,57(3): 377-378.

[7] Lyutovich A, Maile K, Gusko A. Characterization of the generation of ions in electron beam evaporator for the control of metal deposition processes. Surface and Coatings Technology, 2002,12(7) :151-152.

[8] 孙屹群,汤彦骐. 冷阴极离子源辅助镀膜技术及应用. 激光技术, 1997, 21(5):54-62.

[9] Hsu S, Yang T S, Chen T K. Ion-assisted electron-beam evaporation of carbon-doped titanium oxide films as visible-light photo catalyst. Thin Solid Films,2007,515(23):3521-3526.

[10] Jun Z, Zhe W, Zhanhe L. Influence and determinative factors of ion-to-atom arrival ratio in unbalanced magnetron sputtering systems. Journal of University of Science and Technology,2008,15(34):775-781.

[11] Ronghua W, Tom B, Chris R. Metal plasma immersion ion implantation and deposition using a metal plasma electron evaporation source. Surface Coating Technology,2005,200(32):579-583.

[12] Modes T, Scheffel B, Metzner. Structure and properties of titanium oxide layers deposited by reactive plasma activated electron beam evaporation. Surface Coating Technology,2005,200(32):306-309.

[13] Colpo P, Ernst. Determination of the equivalent circuit of inductively coupled plasma sources. Journal of Applied Physics,1999,85(4): 1366-1371.

[14] Sehwabedissen A, Roberts J R. Comparison of electron density measurements in planar inductively coupled plasmas by means of the plasma oscillation method and langmuir probes. Plasma Sources Science and Technology,1998,7(23):119-129.

[15] Keller J H. Inductive plasmas for plasma processing. Plasma Sources Science and Technology,1996,5(2):166-172. (责编 深蓝)