

УДК 539.19; 621.3

Ю.С. КРАВЧЕНКО, В.С. ОСАДЧУК, С.Ю. КРАВЧЕНКО, Г.В. ІВЧУК

## ВИМІРЮВАННЯ ТА КОНТРОЛЬ ТЕМПЕРАТУРИ ПЛАЗМИ МІКРОЗОНДОВИМ МЕТОДОМ

*Вінницький національний технічний університет  
95, Хмельницьке шосе, м. Вінниця, 21021, Україна*

**Анотація.** На основі експериментальних даних і відповідних розрахунків проаналізовано можливість використання для контролю і управління технологічним плазмохімічним процесом в якості первинних перетворювачів температури газу термопарних термозондів.

**Аннотация.** На основе экспериментальных данных и соответствующих расчетов проанализирована возможность использования для контроля и управления технологическим плазмохимическим процессом в качестве первичных преобразователей температуры термопарных термозондов.

**Abstract.** On base experimental data and corresponding to calculation is analysed possibility of the use for checking and management technological plasmachemical process as primary converters of the temperature thermofresh thermoprobes.

**Ключеві слова:** нерівноважна плазма, мікрозонд, термопара, мікроелектронні частотні перетворювачі.

### ВСТУП

Температура газу нерівноважної плазми є одним з найважливіших її параметрів, який визначає не тільки внутрішні енергетичні параметри самої плазми, але й енергетичний стан її складових (іонів, молекул, атомів, радикалів), характер, механізми і кінетику фізико-хімічних перетворень [1], ефективність взаємодії хімічно активних частинок плазми з поверхнею твердого тіла [2]. Для вимірювання температури частинок плазми найчастіше використовують оптичні спектральні методи діагностики, які пов'язані з уширенням спектральних ліній її власного випромінювання: штарківського - для визначення температури електронів [3] та доплерівського – для визначення температури газу (температури важких частинок) [1].

В той же час, застосування оптичних методів вимірювання температури для контролю плазмохімічних технологічних процесів в режимі реального часу ускладнене [4], оскільки воно передбачає процедуру складних машинних розрахунків. Крім того, оптичний метод діагностики температури визначає лише яскравісну температуру відповідної збудженої частинки плазми, яка не завжди збігається з дійсною температурою газу [1]. Існує і альтернативний метод вимірювання температури газу, який базується на використанні спеціальних термозондів, які виготовляються на основі вакуумно ізольованих мікротермопар, розміщених в скляних або кварцових капілярах [5].

Мета роботи – проаналізувати можливість використання мікрозондових вимірювань температури в технологічних умовах для контролю плазмохімічних процесів на основі підвищення чутливості первинних мікрозондових сенсорів і ступеня достовірності результатів вимірювання температури шляхом застосування в системі температурного контролю принципу частотного перетворення аналогового сигналу [6].

### АНАЛІЗ ПРОБЛЕМИ

Термозонди для вимірювання температури газу, здебільшого, використовуються при дослідженні фізико-хімічних перетворень, які визначають кінетику і механізми хімічних реакцій, що протікають в нерівноважній плазмі [1]. Так в роботі [6] експерименти по визначенню параметрів нерівноважної плазми в тетрахлорметані проводились на спеціалізованій установці, де в якості плазмового реактора використовувалась вертикальна розрядна трубка (рис. 1).

В якості спектроскопічної домішки до основного газу використовували ксенон та окис вуглецю.

При цьому враховувалось, що потенціали збудження ліній ксенону (10,5 - 11,5 eВ) і смуг окису вуглецю (10,7 eВ) близькі до потенціалів збудження ліній атомарного хлору. Витрата  $CCl_4$  розраховувалась по зменшенню рідини в резервуарі, а витрата доповнюючих газів - по перепаду тиску на каліброваному капілярі, а тиск газу в розрядній трубці вимірювався масляним U-подібним рідинним манометром і змінювався у діапазоні від 10 до 80 Па.

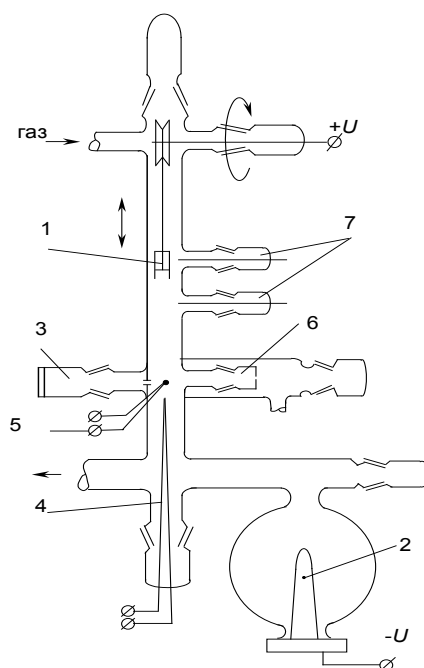


Рис.1. Розрядна трубка: 1 – анод; 2 – катод; 3 – оптичне вікно; 4 – термозонд; 5 – пристінкова термопара; 6 – діафрагма для мас-спектральних вимірювань; 7 - електричний ленгмюрівський зонд

За допомогою шліфа анод міг переміщуватись відносно отвору для реєстрації спектра власного випромінювання плазми в межах від 0 до 30 см. При цьому змінювалась довжина розряду та час перебування газу в ній. Це супроводжувалось зміною напруги на розряді та інтенсивності спектру випромінювання. Напруга змінювалась лінійно з довжиною, що дозволило зробити висновок про постійність напруженості поля в стовпі розряду та визначити її.

Випромінювання плазми у діапазоні довжин хвиль 400-850 нм реєстрували крізь отвір у стінці та віконце поперек розряду монохроматором МДР-4 і самописним приладом ЛКС-4. Мас-спектральні вимірювання проводили за допомогою радіочастотного мас-спектрометра РОМС-8.

Як впливає з результатів вимірювань (табл. 1), додаток ксенону (до 50%) при незмінному тиску, силі струму розряду і повній витраті газу призводить до того, що напруженість електричного поля зменшується приблизно на 10%, а при додатку у вигляді окису вуглецю (до 40%) - збільшується на 15 - 20%. Температура стінки з додатком ксенону трішки зменшується, а з додатком окису вуглецю - збільшується, що пояснюється зміною питомої потужності розряду, яка розсіювалася на одиницю довжини розрядної трубки. Температура термопари, введеної на вісь розряду, залежала від діаметра її кварцової оболонки при незмінних параметрах розряду і складу газу; монотонно збільшуючись при зменшенні діаметру. Різниця збільшується із збільшенням питомої потужності розряду та температури термопари (рис. 2).

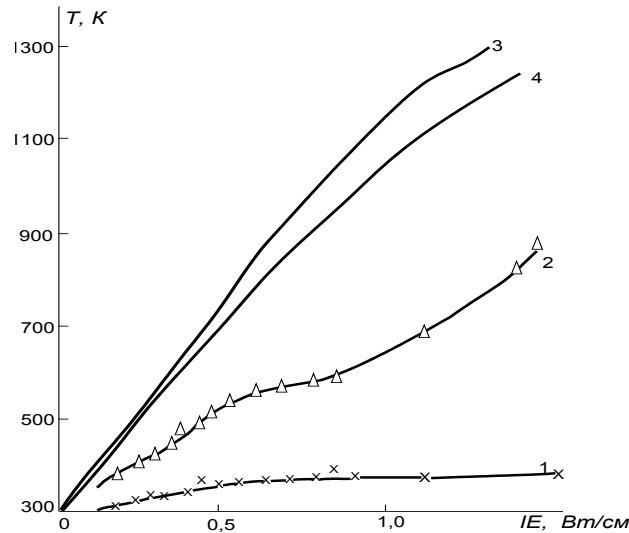


Рис.2. Залежність від питомої потужності розряду температури стінки (1), термопар (d<sub>т</sub>=0,65мм) на осі розряду (2) та температури газу на вісі розряду (3-4). Крпки – експеримент, лінії (1,2) проведені по експериментальним точкам, криві (3-4) – розрахунок у передбаченні η=1 (3) та η=0,8

Причиною такої різниці температур термопар різного діаметра є відмінність їх від температури газу на осі розряду, пов'язана з променевими тепловими втратами термопар та можливим нагріванням термопар за рахунок дезактивації на її поверхні збуджених частинок, рекомбінації - заряджених частинок та радикалів. Не дивлячись на те, що мінімальні коефіцієнти гетерогенної дезактивації та рекомбінації спостерігаються для діелектриків, в тому числі й для кварцу, їх внесок необхідно враховувати при інтерпретації результатів вимірювань [7,8].

Температура газу у будь-якій точці розряду може бути розрахована за формулою [5]

$$T(r) - T_R = \sqrt{\frac{0,256 \cdot I \cdot E \cdot \eta}{A} \cdot J_0 \left( 2,4 \frac{r}{R} \right) + \frac{\xi_R^2}{A^2}}, \quad (1)$$

де  $T_R$  – температура газу біля стінки розрядної трубки,  $I$  – сила струму розряду,  $E$  - напруженість поля в розряді,  $J_0$  - функція Бесселя нульового порядку,  $\xi$  - коефіцієнт теплопровідності газу, залежність якого від температури апроксимується виразом :

$$\xi(T) = \xi_R + A(T - T_R) \quad (2)$$

Значення коефіцієнта теплопровідності для  $CCl_4$ ,  $CO$  та  $Xe$  запозичені з довідника [9] і розраховувались теоретично по [10] з використанням теплоємності молекулярних газів [11]. Різниця результатів розрахунків та експериментів не виходила за межі похибки 5÷7%. Теплопровідність суміші газів розраховувалась по приблизній формулі

$$\xi_{см} = \frac{\sum y_i \cdot M_i^{1/3} \cdot \xi_i}{\sum y_i \cdot M_i^{1/3}}, \quad (3)$$

де  $Y_i \cdot M$  - молярна частка та молекулярна вага компонентів.

У формулу (1) входить невідома величина  $\eta$  - частка потужності електричного поля, яка витрачається безпосередньо на нагрів газу. Для її знаходження використовувались результати термопарних вимірювань, а в розрахунках враховувалось збурення поля концентрацій заряджених частинок термопарою, випромінювання термопар та гетерогенні джерела тепловиділення [5]

$$T(r = r_T) - T_R = \sqrt{\frac{0,256 \cdot I \cdot E \cdot \eta \cdot \phi}{A} - \frac{q_{випр} - q_{гет}}{A} d_T \cdot \ln \frac{D}{d_T} + \frac{\xi_R^2}{A^2} - \frac{\xi_R}{A}}. \quad (4)$$

Тут,  $q_{випр}$ ,  $q_{гет}$  - питомі потоки тепла за рахунок випромінювання та гетерогенних процесів,  $D$  – діаметр розрядної трубки,  $d_T$  – діаметр термопар,  $\phi$  – форм-фактор, який відбиває викривлення поля заряджених частинок. Залежність форм-фактора від  $d_T/D$  запозичена з розрахунків (рис.4.4. [5]), В лівій частині виразу (4)

стоїть температура поблизу поверхні термопари, яка може відрізнятися від температури термопари на величину температурного стрибка  $\delta T$ , який з'являється внаслідок малого діаметра термопари в порівнянні з довжиною вільного пробігу молекул  $\lambda$ . Ці величини розраховувались за формулами:

$$T(r = r_T) = T_T + \delta T, \quad (5)$$

$$\delta T = \frac{2 - \gamma_T}{2\gamma_T} Kn (T_\infty - T_T), \quad (6)$$

де  $\gamma_T$  – коефіцієнт акомодатії поверхні термопари,  $Kn$  – число Кнудсена [10],  $T_\infty$  - температура газу за межами теплового шару поблизу термопари,  $T_T$  - вимірювана температура термопари. Різниця температур розраховувалась з використанням балансу тепла на термопарі [11]:

$$T_\infty - T_T = \frac{q_{\text{випр}} - q_{\text{зем}}}{Nu \cdot \xi} d_T, \quad (7)$$

де число Нуссельта

$$Nu = Nu^{(0)} \cdot \left(1 + 3,4 \frac{Kn}{\gamma_T}\right)^{-1}. \quad (8)$$

Тут  $Nu^{(0)}$  - число Нуссельта у відсутності температурного стрибка. Через малу швидкість потоку газу (менше за  $10^3$  см/с) це число є сталою величиною ( $Nu = 1,95$ ) [12]. Найбільша невизначеність пов'язана з величиною коефіцієнта акомодатії  $\gamma_T$ , яка суттєво впливає на величину температурного стрибка, та з тепловим потоком за рахунок гетерогенних процесів.

З формул (4 - 8) випливає, що температура термопари повинна наближатися до температури газу із зменшенням діаметра термопари. У випадку переваги витрат за рахунок випромінювання, температура буде меншою за температуру газу (так як термопара охолоджується), а при перевазі нагрівання за рахунок гетерогенних процесів, вона повинна бути вищою за температуру газу. Тому температура термопари з більшим діаметром капіляру буде нижчою, ніж у більш тонкої в першому випадку (переважає випромінювання) і вищою, ніж у більш тонкої у другому. У всьому діапазоні параметрів експериментально було отримано, що температура тонкої термопари вища, ніж у тої, діаметр якої більший. Це дозволило зробити висновок, що всюди переважають витрати тепла за рахунок випромінювання термопари.

Величина коефіцієнта акомодатії поступальної енергії для кварцу невідома, але на поверхні металів для важких молекул вона наближається до одиниці [14]. З використанням результатів термпарних вимірювань у тліючому розряді в азоті в діапазоні тисків  $p = 10-60$  Па [7] та формул (4 - 8) можна показати, що коефіцієнт акомодатії молекули азоту на поверхні кварцу повинен бути близьким до одиниці. Це має виконуватись і для більш важких молекул  $CCl_4$ , а тому значення  $\gamma_T = 1$  використовувалось у всіх розрахунках.

Розрахунок за формулами (4 - 8) з використанням результатів термпарних вимірювань (рис. 2) в розряді в  $CCl_4$  з урахуванням температурного стрибка, але без урахування гетерогенних процесів, показав, що значення  $\eta_{\text{розр}}$  лежить в межах від 0,8 до 2,0. Величини  $\eta > 1$  не мають фізичного змісту і можуть пояснюватись неправильним урахуванням (переоцінкою) величини температурного стрибка та нагрівом за рахунок гетерогенних процесів. Якщо припустити, що  $\eta_{\text{розр}} = 0,7 - 0,98$  і  $Kn = 0,5 - 1,5$ . Оцінка виділення тепла за рахунок гетерогенних процесів показала, що основний вклад можуть давати гетерогенні реакції рекомбінації радикалів та іонів. З зондових вимірювань була визначена густина потоку іонів при плаваючому потенціалі, яка складає при  $p = 43$  Па  $j_+ = 2,1$  мА/см<sup>2</sup> при  $I = 10$  мА та  $j_+ = 1,4$  мА/см<sup>2</sup> при  $I = 5$  мА. Вважаючи, що  $j_+ \sim I$ , ми оцінили нагрівання за рахунок рекомбінації іонів. Величина його складає від 10 до 12% від променевого потоку з поверхні термопари ( $d_T = 0,65$  мм) для всіх досліджуваних режимів. Оцінка гетерогенного нагрівання за рахунок рекомбінації радикалів проводилась за результатами вимірювання швидкості загибелі атомів хлору в розряді. Виявилось, що цей потік може складати не більше 10-40% від  $q_{\text{випр}}$ . Таким чином, у всьому досліджуваному діапазоні режимів величина гетерогенного потоку менша, ніж випромінювання ( $q_{\text{гет}}/q_{\text{випр}} = 0,2 - 0,5$ ). Це погоджується зі зміною температури термопари при зменшенні їх діаметра (рис. 2). З урахуванням гетерогенного нагрівання та наявності стрибка температур розрахунок за формулами (4 - 8) дав величини  $\eta_{\text{розр}} = 0,6 - 1,8$ . Відмінність  $\eta$  від одиниці можна оцінити з балансу тепла розрядної трубки без введення

термопар. Ці розрахунки показують, що за рахунок рекомбінації радикалів та іонів на стінках трубки з розряду може вноситись від 1 до 35% потужності електричного поля, тобто повинно бути  $\eta = 0,65 - 0,93$ . Ці дані дозволяють зробити висновок, що більш за все великі значення  $\eta_{розр} > 1$  можуть бути пов'язані з переоцінкою температурного стрибка на термопарі.

Приблизність оцінки гетерогенних процесів та температурного стрибка вимагали проведення незалежних вимірювань температури газу. Для цього був використаний спектроскопічний метод вимірювання температури заселення обертових рівнів на смузі випромінювання  $CO (B^1\Sigma^+, v = 0 - A^1\Pi, v' = 2)$  з нерозділеною обертовою структурою. Виміряні значення обертової температури, яка згідно з оцінками повинна бути тотожною температурі газу (рис. 3.) відповідає величині  $\eta = 0,8 \pm 0,04$ . Одержане значення задовільно узгоджується з результатами розрахунків за формулами (4 - 8) з термопарних вимірювань з урахуванням гетерогенних процесів, але без врахування температурного стрибка, як у чистому  $CCl_4$  (рис. 2) та у суміші з ксененом.

Ці значення температури газу на осі розряду використовувались для розрахунків концентрації важких частинок та приведеного поля на осі розряду (рис. 4). Залежність величини приведеного поля від параметра  $R \cdot N_0(0)$  у чистому  $CCl_4$  описується єдиною кривою у широкому діапазоні вимірювання параметрів розряду: густини струму від 0,26 до 25  $mA/cm^2$ , діаметра трубки  $D = 1,6 - 5$  см.

Введення спектроскопічного додатку окису вуглецю призводить до збільшення напруженості поля, однак температура газу дещо зменшується при  $IE = const$  (рис. 3) внаслідок більшої теплопровідності суміші. В результаті  $E/N_0(0)$  в межах похибки при одних і тих же значеннях параметра  $R \cdot N_0(0)$  залишається незмінним. Введення додатку ксенону, навпаки зменшує напруженість поля, однак теплопровідність такої суміші менша, ніж для чистого чотирихлористого вуглецю. Тому при тій же питомій потужності розряду температура газу дещо підвищується. Значення приведеного поля знову ж таки залишаються незмінними (рис. 4). Той факт, що значення приведеного поля укладаються на єдину залежність від величини параметра  $R \cdot N_0(0)$  (рис. 4) при змінюванні густини струму на два порядки величини, свідчать про відсутність внеску вторинних процесів іонізації, пов'язаних з зіткненням збуджених частинок або продуктів реакції. Додатки ксенону та окису вуглецю також не змінюють суттєво загальної картини.

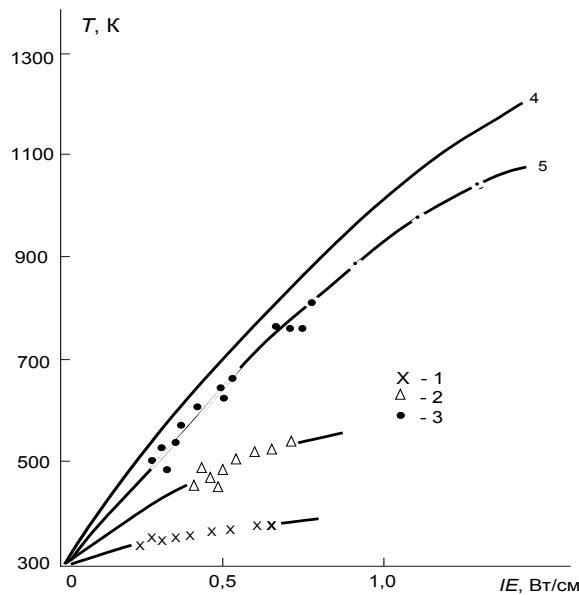


Рис.3. Залежність від питомої потужності розряду в суміші  $CCl_4+CO (Y_{CO}^{(0)} \cong 20\%)$  температури стінки (1), термопар (0,65 мм) на осі розряду (2), обертової температури виміряної по спектральній смузі  $CO$  (3). Лінія 4 - розрахунок у передбаченні  $\eta = 1$ , 5 -  $\eta = 0,8$ .

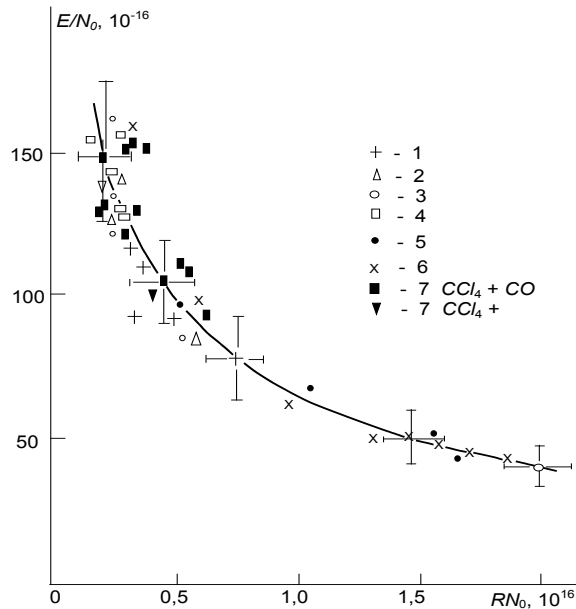


Рис.4. Залежність від параметра  $RN_0$  величини приведенного поля в розряді в  $CCl_4$  при різних густинах струму та радіусах розрядної трубки: 1 –  $j = 0,26$   $\text{mA}/\text{cm}^2$ ,  $R = 2,5$  см; 2 - 1, 2,5; 3 - 3, 2,5; 4 - 5, 0,9; 5 - 10, 0,9; 6 - 25, 0,9; 7 - 2,5 - 25, 0,8; 8 - 2,5 - 25, 0,8.

### ВИСНОВКИ

На основі аналізу експериментальних даних і проведених відповідних розрахунків показано, що за умови врахування особливостей фізико-хімічних процесів, що протікають в нерівноважній плазмі технологічного призначення, використання в якості первинних перетворювачів для вимірювання температури газу термопарних мікрозондів є перспективним. Підвищення чутливості таких перетворювачів можливе за рахунок застосування спеціальних схемотехнічних методів, таких як, наприклад, частотне перетворення первинних інформаційних аналогових сигналів.

### СПИСОК ЛІТЕРАТУРИ

1. Словецкий Д.И. Механизмы химических реакций в неравновесной плазме – М.: Наука, 1980.
2. Орликовский А.А., Словецкий Д.И. Проблемы плазмохимического травления в технологии микроэлектроники // Микроэлектроника. - 1987. - Т. 16. - № 6. - С.497 - 512.
3. Грим Г. Уширение спектральных линий в плазме – М.: Мир, 1978. – 491 с.
4. Орликовский А.А., Руденко К.В. Диагностика in situ плазменных технологических процессов микроэлектроники: Современное состояние и ближайшие перспективы. Часть I // Микроэлектроника. – 2001. – Т.30. – № 2. – С.85 – 105.
5. Иванов Ю.А., Лебедев Ю.А., Полак Л.С. Контактные методы диагностики в неравновесной плазмохимии – М.: Наука, 1981.
6. Кравченко Ю.С. и др. Параметры тлеющего разряда в четыреххлористом углероде // Теплофизика высоких температур. – 1986.- Т. 24. - № 1. – С. 37 – 44.
7. Словецкий Д.И. Разложение углеводородов в тлеющем разряде // Химия плазмы. – 1981.- Вып. 8. – С. 189 – 226.
8. Словецкий Д.И. Механизмы химических реакций в неравновесной фторсодержащей плазме // Химия плазмы. – 1983.- Вып. 10. – С. 108 – 146.
9. Варгафтик Н.Б. Справочник по теплофизическим свойствам газов и жидкостей – М.: Наука, 1972.
10. Гиршфельдер Д., Кертисс Ч., Берд Р. Молекулярная теория газов и жидкостей – М.: ИЛ, 1961.
11. Термодинамические свойства индивидуальных веществ. Справочник / Под ред. В.П.Глушко. – М.: Наука, 1979.
12. Beil G. Niederdruck-Plasmaprozesse in der Halbleiterindustrie // Elektronik Produktion und Pruftechnik. – 1982. - № 1. – S. 741 –744.
13. Эккерт Э.Р., Дрейк Р.М. Теория тепло- и массообмена – М.-Л.: Госэнергоиздат, 1961.
14. Коленчиц О.А. Тепловая аккомодация систем газ - твердое тело – Минск: Наука и техника, 1977.

Надійшла до редакції 03.03.2008р.

**КРАВЧЕНКО ЮРІЙ СТЕПАНОВИЧ** – доцент кафедри електроніки, Вінницький національний технічний університет, Вінниця, Україна.

**ОСАДЧУК ВОЛОДИМИР СТЕПАНОВИЧ** – д.т.н., проф., завідувач кафедри електроніки, Вінницький національний технічний університет, Вінниця, Україна.

**КРАВЧЕНКО СЕРГІЙ ЮРІЙОВИЧ** – студент факультету функціональної електроніки і лазерної техніки ІнАЕКСУ, Вінницький національний технічний університет, Вінниця, Україна.

**ІВЧУК ГАННА ВАСИЛІВНА** – студентка факультету функціональної електроніки і лазерної техніки ІнАЕКСУ, Вінницький національний технічний університет, Вінниця, Україна.