

4. félévi beszámoló  
Horváth Benedek ([horvath.benedek@wigner.hu](mailto:horvath.benedek@wigner.hu))

Statisztikus Fizika, Biológiai Fizika és Kvantumrendszerek Fizikája PhD program  
Témavezető: Derzsi Aranka

A dolgozat címe: **Control of particle properties in low-pressure radio frequency gas discharges – A részecsketulajdonságok szabályozása alacsony nyomású rádiófrekvenciás gázkisülésekben**

2021. június 1.

## Bevezetés

A rádiófrekvenciás (RF) táplálású, kapacitív csatolású gázkisülések széles körű – pl. a chip- és napelemgyártás technológiai lépéseiben való – gyakorlati alkalmazásuk miatt igen fontos kutatási területét képezik az alacsonyhőmérsékletű plazmafizikának. A plazma alapú felületkezelési eljárások során az elektródán lévő szubsztrátréteg tulajdonságait a plazmából származó, a felületet bombázó részecskék változtatják meg, így lényeges, hogy a plazma részecskéi – különösen az ionok – milyen fluxussal és energiaceloszlással érik el az elektródákat. A két részecsketulajdonság egymástól független szabályozására gyakran alkalmazott és jól működő módszer a többfrekvenciás gerjesztő feszültség használata:

$$\phi(t) = \sum_{k=1}^N \phi_k \cos(2\pi kft + \theta_k),$$

ahol  $f$  az alapharmonikus frekvenciája,  $k$  a felharmonikusok sorszámát,  $\phi_k$  az egyes harmonikusok feszültségamplitúdója,  $\theta_k$  pedig azok fázisszöge. A harmonikusok számától és fáziskülönbségétől függően aszimmetrikus hullámforma jöhet létre, aminek következtében a plazmában megjelenik egy egyenfeszültség-komponens, biztosítva, hogy egy rádiófrekvenciás periódusra véve a két elektródára érkező töltésmennyiség zérus legyen. A  $\theta_k$  paraméter az egyenfeszültségű komponens – és ezen keresztül az elektródákra érkező ionok energiájának a – kontrollparamétereként funkcionál, amitől bizonyos kisülési körülmények között független az ionok fluxusa. A gyakorlati alkalmazások szempontjából ezek az optimális kisülési paraméterek. A felületi folyamatok optimalizációján túl releváns kutatási kérdés ezeknek a folyamatoknak a gázkisülés dinamikájára való visszahatása. A közelmúltban vizsgáltam az elektronok által az elektródafelületről kiváltott másodlagos elektronok szerepét (elektropozitív) argon gázkisülésben (B Horváth *et al* 2017 *Plasma Sources Sci. Technol.* **26** 124001; B Horváth *et al* 2018 *J. Phys. D: Appl. Phys.* **51** 355204), elektronegatív gázokban és gázkeverékekben azonban nem történtek részletes vizsgálatok a felületi folyamatok szerepét illetően.

A PhD munkám keretében a plazma alapú felületmódosító eljárásokban alkalmazott elektropozitív és elektronegatív gázokban és gázkeverékekben működő, alacsony hőmérsékletű, alacsony nyomású kapacitív rádiófrekvenciás gázkisülések szisztematikus vizsgálatát tűzöm ki célul. Tanulmányozom az elektronok energiafelvételi mechanizmusát és az ionizációs dinamikát, a különféle gázfázisú ütközések és felületi folyamatok hatását a plazmajellemzőkre, illetve feltérképezem az ionfluxus és ionenergia független szabályozásának lehetőségeit többfrekvenciás gázkisülésekben, ami elősegíti a plazma alapú felületkezelési eljárások optimalizációját.

## Az első három félévben elvégzett kutatások

A doktori képzés korábbi félévei során különféle gázokban keltett gázkisülések dinamikáját tanulmányoztam, aminek kapcsán eddig két publikáció jelent meg [1–2]. Az Új Nemzeti Kiválóság Program (ÚNKP) keretében neon gázban működtetett egyfrekvenciás (tiszán szinuszos hullámformával gerjesztett) gázkisülésekben vizsgáltam az elektronok energiafelvételi mechanizmusait a nyomás és a gerjesztő frekvencia függvényében. Ezt a munkát az [1]-es számú publikáció foglalja össze. Az általam végzett Particle-in-Cell/Monte Carlo Collisions (PIC/MCC) részecske alapú numerikus szimulációkat összehasonlítottam a csoportunkban végzett fázisfelbontott optikai emissziós spektroszkópiai mérésekkel (a mérésekben magam is részt vettem). A kísérlettel verifikált szimuláció megmutatta, hogy az ionizációs dinamika alacsony frekvencia és/vagy nagy nyomás esetén jelentősen különbözhet a gerjesztés tér- és időbeli eloszlásától, mert a jelentős számú nagyenergiás, az elektródák felszínéről ionok által kiváltott elektronok ( $\gamma$ -elektronok) nagyobb valószínűséggel okoznak ionizációt, mint gerjesztést. Ezen túlmenően a szimulációk és a kísérletek egyaránt lényegi változást mutattak az ionizációs dinamikában a nyomás növelésével, rögzített gerjesztő frekvencia és feszültségamplitúdó mellett.

A [2]-es számú publikációban az elektron–elektróda kölcsönhatás általam implementált valóságű modelljével vizsgáltuk argongázban a felületi folyamatok szerepét többfrekvenciás gázkisülésekben, rézből készült elektródákat modellezve. Ebben a vizsgálatban az elektronok általi elektronkiváltás mellett a nehéz részecskék (ionok, gyors atomok) keltette elektronemissziót is egy energiafüggő, valóságű modellel kezeltük, illetve az elektródák  $\text{Ar}^+$  ionok és Ar atomok általi porlasztását is modelleztük, a folyamat energiafüggését figyelembe véve. A gerjesztő feszültség harmonikusainak  $\theta_k$  fázisszögének hangolásával az elektródafelületre érkező ionok és atomok energiája hatékonyan kontrollálhatónak bizonyult, aminek egyenes következményeként a porlasztás – a porlasztott rézatomok elektródáról kimenő fluxusa – is kontrollálható. Ez a technológiai alkalmazások szempontjából kulcsjelentőségű.

A kutatómunkám jelentős részét az oxigénben működtetett gázkisülések tanulmányozása tette ki. Elsősorban a plazma részecskéinek az elektródákkal való kölcsönhatását és a felületről kiváltott másodlagos elektronok plazmajellemzőkre gyakorolt hatását vizsgáltam PIC/MCC szimulációs módszerrel. Ehhez különféle modelleket implementáltam és használtam a felületi folyamatok leírására. Az elektron–elektróda folyamatokat kétféle megközelítéssel modelleztem a szimulációkban: (i) használtam egy egyszerű modellt, ami konstans  $\eta_e = 0,2$  együtthatóval veszi figyelembe az elektronok rugalmas visszaverődését, illetve (ii) egy valóságű modellt, ami megkülönböztet rugalmas és rugalmatlan visszaverődést, valamint figyelembe veszi az elektronok általi elektronkiváltást, mindegyiket a beérkező elektron energiájának és beesési szögének függvényében. A nehéz részecskék felülettel való kölcsönhatására szintén két különböző modellt használtam: (i) az egyszerű modell az  $\text{O}_2^+$  ionok általi elektronkiváltást vette figyelembe egy konstans valószínűségi együtthatóval ( $\gamma = 0,4$ ), (ii) egy másik modell pedig energiafüggő módon vette figyelembe az  $\text{O}_2^+$  ionok általi elektronkiváltást. A valóságű modelleket én magam implementáltam, továbbfejlesztve ezzel a szimulációs kódot. Valóságű modellt alkalmazva az elektronokra,  $\text{SiO}_2$  elektródákat feltételezve, konstans  $\gamma = 0,4$  ionok általi elektronkiváltási együttható mellett alacsony nyomáson (0,5–1 Pa) jelentősen eltérő plazmaparamétereket figyeltem meg az egyszerű modell segítségével megfigyeltekhez képest. Míg az egyszerű elektron–elektróda modell alapján az elektronsűrűség adott nyomáson gyakorlatilag konstans marad a feszültség növelése során (vizsgálataimban 500–1200 V között), az elektronok általi elektronkiváltást energiafüggő módon figyelembe vevő valóságű modell szerint az elektronsűrűség lineárisan növekszik a feszültséggel, a vizsgált tartományban mintegy 7-es faktorról (lásd: 1. ábra, bal oldali panel, A és B modell eredményei). Az elektronok általi gerjesztéssel létrejövő  $\text{O}_2(a^1\Delta_g)$  metastabil

molekulák koncentrációja hasonlóképp állandó marad az egyszerű modell alapján, míg a valóságú modell szerint lineárisan, mintegy 5-ös faktossal növekszik a feszültség növelésével. Mindeközben a gázkisülés elektronegativitása (az  $O^-$  negatív ionok és az elektronok sűrűségének aránya) a feszültség növelésével csökken; az egyszerű modell szerint lineárisan a kezdeti érték felére, míg a valóságú modell szerint a változás exponenciális, és mintegy ötödére csökken az elektronegativitás (lásd: 1. ábra, középső panel, A és B modell eredményei). Mindezek háttérben egy komplex elektronkiváltási és ionizációs dinamikát figyeltem meg a valóságú modell segítségével, amiben az ionok és az elektronok által az elektródákról kiváltott másodlagos elektronok (úgynevezett  $\gamma$ - és  $\delta$ -elektronok) együtt játszanak meghatározó szerepet, a korábban argongázban megfigyeltekhez hasonló módon. A nehéz részecskék általi felületi elektronkiváltás valóságú modelljével a legutóbbi félév végéig még nem voltak eredményeim, a számolások még csak folyamatban voltak, így a nehéz részecskék általi elektronkiváltás szerepének beható vizsgálatára a jelen félév során került sor, amit a következő fejezetben részletezek.

### Az aktuális félévben elvégzett kutatások

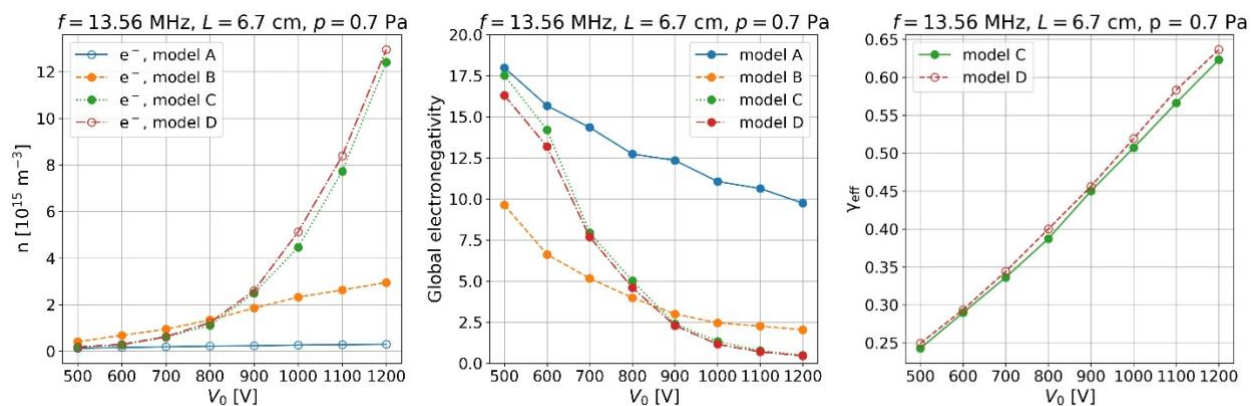
A félév során folytattam az oxigéngázban működtetett egyfrekvenciás gázkisülések tanulmányozását a PIC/MCC részecske alapú szimulációs módszerrel. A fentiekben ismertetett felületi modelleken túlmenően implementáltam a semleges  $O_2$  molekulák általi elektronkiváltás energiafüggő modelljét, hogy ezeknek a részecskéknak a hozzájárulása is figyelembe vehető legyen a másodlagos elektronok plazmajellemzőkre gyakorolt hatásának a vizsgálatokor. A semleges molekulák a másodlagos elektronok kiváltásában csak akkor játszanak szerepet, ha kellően nagy sebességgel érkeznek a felületre. A modellben felhasznált, irodalomból átvett energiafüggő elektronkiváltási együtthatóból kiindulva 50 eV-nál nagyobb energiájú molekulákat vettem figyelembe. A semleges  $O_2$  molekulák  $O_2^+$  ionokkal való töltéscicserélő ütközések során keletkeznek a gázkisülésben, és jó közelítéssel ütközés nélkül repülnek át a plazmán, a keletkezési energiájukat megtartva az elektródának ütközés pillanatáig. Az elektronok és nehéz részecskék felületi folyamatainak különböző modelljeinek kombinálásával összességében négyféle felületi modellt állítottam össze az alábbi táblázat szerint:

|                                   | A | B | C | D |
|-----------------------------------|---|---|---|---|
| Konstans $\eta_e = 0,2 e^-$ -ra   | X |   |   |   |
| Valóságú modell $e^-$ -ra         |   | X | X | X |
| Konstans $\gamma = 0,4 O_2^+$ -ra | X | X |   |   |
| Valóságú $\gamma O_2^+$ -ra       |   |   | X | X |
| Valóságú $\gamma O_2$ -re         |   |   |   | X |

A fentiek közül ebben a félévben a nehéz részecskék általi elektronkiváltást valóságúen közelítő C és D modellel futtattam szimulációkat, aminek segítségével fény derült a nehéz részecskék általi elektronkiváltás jelentős mértékére és valóságú modellezésének fontosságára a szimuláció validitása szempontjából. A szimulációk alapján az egy  $O_2^+$  ionra jutó effektív  $\gamma$  elektronkiváltási együttható értéke a feszültségamplitúdó függvényében lineárisan növekszik, az 1200 V-os legmagasabb vizsgált amplitúdó esetén 0,65 értéket megközelítve (lásd: 1. ábra, jobb oldali panel). Emiatt nagy feszültségamplitúdó esetén az elektronok, és így az ionok, valamint az  $O_2(a^1\Delta_g)$  metastabil molekulák sűrűsége a konstans  $\gamma = 0,4$  elektronkiváltási együtthatót tartalmazó B modellhez képest többszörösére növekszik, a plazma elektronegativitása pedig lecsökken (lásd: 1. ábra, bal oldali és középső panel). Ez alapvető működésmódbeli eltérést jelent: a nagy számban

megjelenő másodlagos elektronok hatására elektropozitív gázkisülés alakul ki elektronegatív helyett (nagyobb számban lesznek jelen elektronok, mint negatív ionok), ami az ionizációs dinamikában, az elektronok energiafelvételi mechanizmusában és az elektromos térerősségviszonyokban is számottevő változást eredményez. A semleges  $O_2$  molekulák általi elektronkiváltás figyelembe vétele azonban nem okoz számottevő eltérést a szimulációs eredményekben (D modell a C modellhez képest). A felületi másodlagos elektronok oxigén gázkisülésekben betöltött szerepét vizsgáló kutatásom eredményeit egy publikációban foglalom össze, aminek kéziratán már dolgozom, és terveim szerint 2021 nyarán nyújtom be elbírálásra [4].

A félév során a Wigner SZFI Elektromos Gázkisülések Kutatócsoportjával együttműködve szerepet vállaltam egy, a PIC/MCC módszer kapacitív rádiófrekvenciás gázkisülések tanulmányozására való alkalmazását bemutató oktatócikk kéziratának készítésében, elsősorban a szimulációs algoritmus részletes és didaktikus leírásában. A kézirat jelenleg elbírálás alatt áll [3].



1. Ábra. Balra: az elektronsűrűség a feszültségamplitúdó függvényében a négy különböző felületi modell szerint. Középen: a globális (a plazma által elfoglalt, két elektróda közti teljes térrészre vett) elektronegativitás a feszültségamplitúdó függvényében, a négy különböző felületi modell szerint. Jobbra: az egy  $O_2^+$  ionra jutó effektív elektronkiváltási együttható értéke a feszültségamplitúdó függvényében, a nehéz részecskék általi elektronkiváltást valóságúen figyelembe vevő C és D modell alapján.

## Publikációk

- [1] Horváth, Benedek; Derzsi, Aranka; Schulze, Julian; Korolov, Ihor; Hartmann, Péter; Donkó, Zoltán: *Experimental and kinetic simulation study of electron power absorption mode transitions in capacitive radiofrequency discharges in neon*. 2020, Plasma Sources Science and Technology ([PSST 29 055002](#))
- [2] Derzsi, Aranka; Horváth, Benedek; Donkó, Zoltán; Schulze, Julian: *Surface processes in low-pressure capacitive radio frequency discharges driven by tailored voltage waveforms*. 2020, Plasma Sources Science and Technology ([PSST 29 074001](#))
- [3] Donko, Zoltan; Derzsi, Aranka; Vass, Máté; Horváth, Benedek; Wilczek, Sebastian; Hartmann, Botond; Hartmann, Peter: *eduPIC: an introductory particle based code for radio-frequency plasma simulation*. 2021, Plasma Sources Science and Technology (PSST-104394.R1, elbírálás alatt)

- [4] Horváth, Benedek; Donkó, Zoltán; Schulze, Julian; Derzsi, Aranka: *The effect of secondary electrons in low-pressure capacitively coupled Oxygen plasmas*. Kézirat készületben, tervezett beküldés 2021 nyarán.

### Tanulmányi tevékenység

A félév során két kurzust végzek el az ELTE-n:

- Python programozás és hálózatok (FIZ/3/083),
- Az érzékelés biofizikája II.: Bioakusztika (FIZ/3/045E),

illetve a Ruhr-University Bochum egy kurzusának informális hallgatója vagyok 2021. április–augusztus között:

- Technological High Frequency Plasmas

### Konferenciák

- *The 72<sup>nd</sup> Annual Gaseous Electronics Conference*, 2019. október 28–november 1., College Station, Texas, USA, nemzetközi konferencia. Poszter: *Experimental confirmation of transitions in the discharge operation mode in low-pressure capacitively coupled Ne plasmas*.
- *The 73<sup>rd</sup> Annual Gaseous Electronics Conference*, 2020. október 5–9., nemzetközi online konferencia.
  - o Meghívott workshop-előadás: *Computationally assisted in-situ measurement of secondary electron emission coefficients in CCPs*.
  - o Poszter: *The role of electron-induced secondary electrons in low-pressure capacitively coupled Oxygen plasmas*.
  - o Poszter társszerzője: *Sensitivity analysis of PIC/MCC simulation results on the parameters of a realistic model for electron-surface interaction in low-pressure capacitively coupled radio-frequency discharges*
- *Symposium on Application of Plasma Processes*, 2021. február 4–5., nemzetközi online konferencia. Előadás: *The role of electron-induced secondary electrons in low-pressure capacitively coupled Oxygen plasmas*.
- *International Online Plasma Seminar* nemzetközi online szeminárium (szervező: Ruhr University Bochum, Institute for Electrical Engineering and Plasma Technology).
  - o Előadás, 2020. február 20.: *Experimental and kinetic simulation study of electron power absorption mode transitions in capacitive RF discharges in neon*.
  - o Részvétel kétheti rendszerességgel.
- *Focus Group Meeting on Technological High Frequency Plasmas* nemzetközi online szeminárium (részvevők: Ruhr-University Bochum, Institute for Electrical Engineering and Plasma Technology és külső szakmai partnerek).
  - o Előadás, 2021. április 20.: *The effect of secondary electrons in low-pressure capacitively coupled Oxygen plasmas*.
  - o Részvétel kétheti rendszerességgel.

- *International Group Meeting* nemzetközi online szeminárium (résztevők: Ruhr-University Bochum, Institute for Electrical Engineering and Plasma Technology és külső szakmai partnereik).
  - Előadás, 2021. május 25.: *The effect of secondary electrons in low-pressure capacitively coupled Oxygen plasmas.*
  - Részvétel kétheti rendszerességgel.

### **Elismerések**

2019. szeptember 1 – 2020. június 30. között ÚNKP ösztöndíjban részesültem.