

Comparaison d'une sonde calorimétrique et d'un capteur à thermopile pour la mesure des transferts d'énergie plasma basse pression /surface

Pierre-Antoine CORMIER^{1*}, Anne-Lise THOMANN¹, Nadjib SEMMAR¹, Rémi DUSSART¹, Jacky MATHIAS¹, Matthias WOLTER², Marc STAHL², Holger KERSTEN²

¹ GREMI, UMR 6606, CNRS-Université d'Orléans,
14 rue d'Issoudun, BP 6744, 45067 Orléans cédex2, France

² Université de Kiel, Allemagne, Institut de Physique Expérimentale et Appliquée, Leibnizstrasse (IEAP) 11-19, 24098 Kiel, Allemagne

*(auteur correspondant : [pierre-antoine.cormier@univ-orleans.fr](mailto: pierre-antoine.cormier@univ-orleans.fr))

Résumé – On montre dans cette étude comparative la faisabilité de mesures de densités de flux par deux diagnostics thermiques différents, dans un plasma RF d'argon pour une gamme de puissance allant de 0 à 100 W. Une sonde calorimétrique, fonctionnant par principe inertiel, et un capteur à thermopile sont alternativement placés dans une décharge RF asymétrique dans les mêmes conditions expérimentales. Bien que les deux techniques soient différentes, les densités de flux ainsi mesurées sont en bon accord. Des valeurs relativement faibles (de l'ordre de quelques dizaines de mW/cm²) augmentent de façon quasiment linéaire en fonction de la puissance RF.

Nomenclature

φ	densité de flux, W/m^2	$\dot{H}_{S,ech}$	variation d'enthalpie de la sonde par unité de temps pendant l'échauffement, W
P_E	puissance reçue par la sonde, W/m^2	J_{film}	flux d'énergie dû aux réactions chimiques et à la condensation, W/m^2
P_S	puissance sortante de la sonde, W/m^2	$\dot{H}_{S,ref}$	variation d'enthalpie de la sonde par unité de temps pendant le refroidissement, W
J_i	flux d'énergie des ions, W/m^2	T_S	température de la sonde, K
J_e	flux d'énergie des électrons, W/m^2	C_S	capacité calorifique de la sonde, $J.K^{-1}$
J_n	flux d'énergie des neutres, W/m^2		
J_{rad}	flux radiatif (surfaces chaudes, plasma), W/m^2		

1. Introduction

L'étude des interactions plasma/surface présente un grand intérêt pour la caractérisation de beaucoup de procédés plasma basse pression, tels que les procédés de dépôt ou de gravure [1]. Les particules du plasma (neutres, ions, électrons...) qui interagissent avec les surfaces environnantes (substrat ou parois), ainsi que d'autres phénomènes (émission radiative du plasma, éléments du réacteur chauffés, réactions chimiques, etc.) contribuent au transfert du flux global d'énergie. On peut estimer la densité du flux global de l'énergie transférée au niveau du substrat (surface de la sonde dans ce travail) par la relation suivante [2] :

$$P_E = \int \varphi \cdot dS = \int (J_i + J_e + J_n + J_{rad} + J_{film}) \cdot dS \quad (1)$$

En complément des diagnostics couramment utilisés pour caractériser le plasma (sonde de Langmuir, spectroscopie d'émission, spectrométrie de masse...), la mesure directe du flux d'énergie entre le plasma et la surface traitée peut permettre un contrôle plus fin du procédé.

La majorité des études menées dans ce domaine sont basées sur des mesures indirectes du flux. Kersten et al. [2-3] ont élaboré une sonde calorimétrique afin d'estimer l'énergie

transférée à la surface à partir de l'enregistrement d'un thermogramme. Cette sonde nécessite l'acquisition de données pendant plusieurs dizaines de secondes pendant et après le plasma pour pouvoir en déduire a posteriori le flux d'énergie au cours du traitement. De manière à pouvoir effectuer des mesures de flux directes, un capteur (HFM microsonde) composé d'une thermopile a été adapté pour un fonctionnement à basse pression et inséré dans un système porte échantillon par Thomann et al. [4-5].

En vue d'explorer les limites d'utilisation de chacun des deux capteurs précités, nous comparons ici leurs réponses à une charge thermique créée par plasma. Les deux capteurs sont ainsi confinés dans un même réacteur plasma (décharge RF asymétrique) et les résultats obtenus dans les mêmes conditions opératoires (pression constante, puissance RF variable) sont discutés.

2. Description et fonctionnement de la sonde calorimétrique

2.1. Principe de fonctionnement

Une sonde calorimétrique développée à l'IEAP, fixée sur un support en céramique (macor), est constituée d'une plaque de tungstène de 50 μm d'épaisseur (Fig. 1). Un thermocouple type K, et un fil de cuivre sont soudés sur la face arrière de la plaque de tungstène, permettant respectivement la mesure de la température, et la polarisation de la sonde.

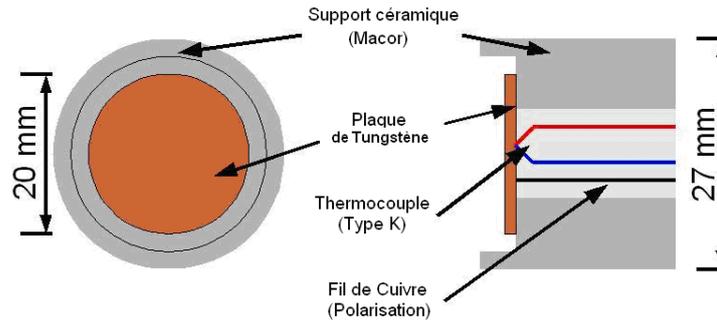


Figure 1 : Schéma de la sonde thermique

Le flux d'énergie induit par l'allumage du plasma provoque dans un premier temps l'échauffement de la sonde, pour lequel on enregistre le thermogramme correspondant. Dès que l'alimentation du plasma est arrêtée, on enregistre dans un second temps, le thermogramme de la séquence de refroidissement. En considérant l'uniformité de la température dans la plaque de tungstène à chaque instant, la variation d'enthalpie au niveau de la sonde (S) est alors donnée par :

$$\dot{H}_S = C_S \frac{dT_S}{dt} \quad (2)$$

Le bilan énergétique au niveau du substrat pendant l'échauffement est donc donnée par $\dot{H}_{S,ech} = \frac{dT_{S,ech}}{dt} = P_E - P_S(T_S)$ et par $\dot{H}_{S,ref} = \frac{dT_{S,ref}}{dt} = -P_S(T_S)$ [2], pendant le refroidissement de la sonde. Ces deux expressions sont calculées pour chaque température mesurée pendant l'échauffement et le refroidissement, et soustraites pour obtenir la puissance reçue par la sonde :

$$P_E = C_S \left[\frac{dT_{S,ech}}{dt} - \frac{dT_{S,ref}}{dt} \right] = C_S \cdot F(T_S) \quad (3)$$

$F(T_S)$ est la fonction qui correspond au terme de soustraction des variations de température pendant l'échauffement et le refroidissement.

La capacité calorifique de la sonde est donc un paramètre déterminant pour évaluer le flux total d'énergie. Les divers composants (support, plaque, soudure...) ayant chacun une capacité thermique propre, une opération de calibration est par conséquent nécessaire.

2.2. Calibration de la sonde calorimétrique

Pour calibrer la capacité calorifique totale de la sonde, une technique utilisant des électrons issus d'un plasma a été développée par Wendt et al. [6]. Cependant celle-ci ne permet pas de garder constant le flux d'énergie arrivant sur la sonde. Kersten et al. ont proposé d'utiliser un filament chaud de tungstène comme source d'électrons [2]. Ce filament est placé dans une enceinte sous vide (10^{-4} Pa) et soumis à un courant de $I = 1.5$ A et à une tension de $U_1 = 10$ V. Il est polarisé négativement ($U_2 = -80$ V) afin que les électrons atteignent la sonde placée à 10 cm de ce même filament. Celle-ci est alternativement polarisée (U_3) pour accéder successivement à la phase de chauffage suivie de la phase de refroidissement. La puissance électronique peut donc être directement calculée par [2]:

$$P_e = \left(U_3 - U_2 + \frac{U_1}{2} \right) I_s \quad (4)$$

Les électrons constituant la seule source d'énergie dans ce dispositif, la puissance reçue par la sonde est donc rigoureusement égale à la puissance (P_e) des électrons émis. La puissance calculée est tracée en fonction du terme $F(T_S)$ (i.e. equation. 3) comme donnée sur la figure 4.

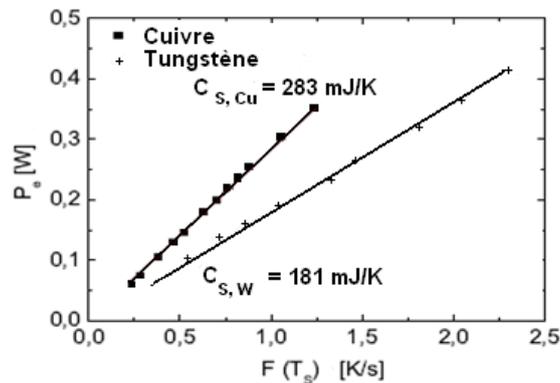


Figure 2 : Courbe de calibration pour des sondes calorimétriques de tungstène et de cuivre [2]

Selon l'éq. 3, le coefficient de la droite de calibration correspond à la capacité calorifique totale de la sonde. Ainsi pour la sonde de tungstène utilisée dans ce travail, la capacité calorifique est égale à 181 mJ/K.

3. Description et fonctionnement du HFM

Le capteur, Heat Flux Microsensor (HFM7-Vattel®) utilisé au GREMI, est représenté sur la figure 3a. Il est composé, d'une thermopile permettant une mesure directe du flux d'énergie, et d'une résistance Pt100 autorisant un contrôle de la température de sa surface

active (Fig. 3b). Son principe de fonctionnement est basé sur l'effet Seebeck. La tension recueillie aux bornes du capteur est mesurée à l'aide d'un nanovoltmètre (Keithley 2182). Le fluxmètre est inséré dans un circuit de refroidissement relié à un bain thermostaté. La température au niveau de la thermopile est ainsi fixée et maintenue en permanence à 5°C dans nos expériences (ancrage thermique). Le HFM étant un produit commercial conçu pour travailler à pression atmosphérique et à température ambiante, il doit, lui aussi, être étalonné pour pouvoir être utilisé dans un plasma basse pression.

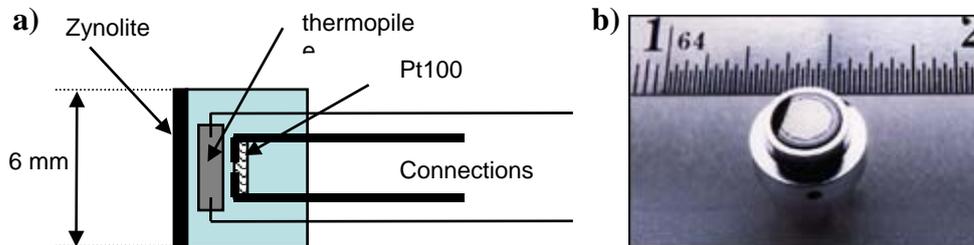


Figure 3 : a) Schéma du HFM, b) Photo de la surface active du HFM

Le HFM est étalonné selon un protocole NIST à l'aide d'un corps noir. La méthode d'étalonnage déjà décrite dans [4-5] ne sera pas détaillée dans ce papier. Les courbes d'étalonnage sont données sur la figure 4.

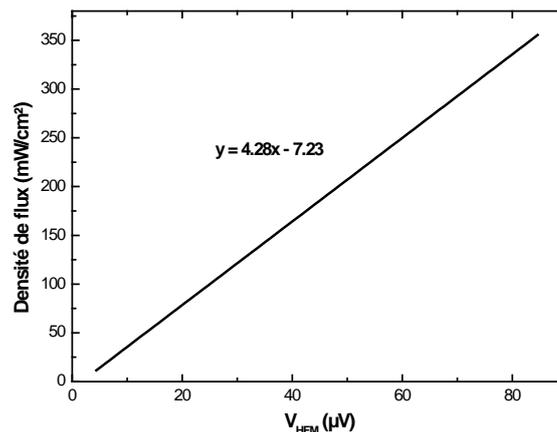


Figure 4 : Droite d'étalonnage du HFM, densité de flux en fonction de la tension mesurée par le HFM

4. Mesure de flux dans une décharge RF avec les deux sondes

Des mesures de flux d'énergie dans un plasma d'argon ont été réalisées à l'IEAP de Kiel et utilisant la sonde calorimétrique et le HFM. Les deux sondes sont alternativement placées au centre d'une décharge capacitive et asymétrique. Elles sont toutes les deux positionnées à 4 cm de l'électrode RF et orientées vers les parois. Une plaque de cuivre de 6 mm de diamètre et de 50 μm d'épaisseur est placée sur la surface active du HFM. Le flux d'énergie est étudié en fonction de la puissance RF appliquée ($P = 0 \dots 100$ W) à une pression constante $p = 10$ Pa.

La figure 5 montre un exemple de signaux bruts typiques obtenus par le HFM (a) et par la sonde calorimétrique (b). Bien que le créneau obtenu par le HFM soit d'une durée de 120 secondes, on voit très bien que la réponse du fluxmètre à l'allumage du plasma est immédiate et permet d'accéder directement à la valeur du flux d'énergie. Ceci représente un temps d'acquisition nettement inférieur à celui de la sonde calorimétrique (2 min). Lorsque le plasma est éteint, le HFM mesure une densité de flux d'énergie environ égale à 6 ± 0.5

mW/cm². Ce flux correspond aux échanges thermiques entre la sonde maintenue à 5°C et son environnement (gaz basse pression, parois maintenues à la température ambiante).

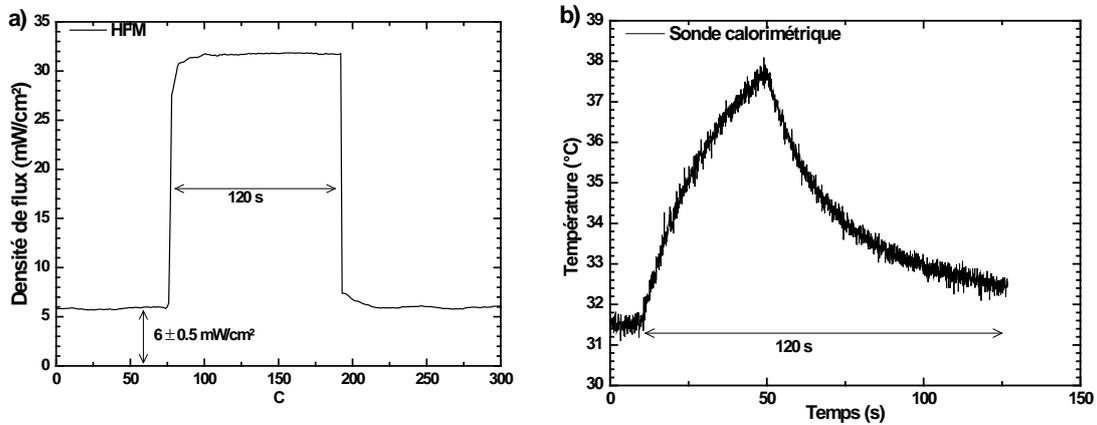


Figure 5 : Exemple de signaux typiques obtenus par le HFM (a) et la sonde calorimétrique (b)

La figure 6 montre l'évolution de la densité de flux d'énergie en fonction de la puissance plasma pour la sonde et le HFM. Les densités de flux mesurées par les deux diagnostics sont du même ordre de grandeur. On obtient une droite dans les deux cas avec des pentes similaires. Cependant sur la figure 6.a, on peut noter une différence entre les valeurs données par la sonde calorimétrique et celles données par le HFM d'une dizaine de mW/cm² en moyenne. Si on soustrait la puissance résiduelle recueillie par le HFM due à son refroidissement à 5°C, (fig. 6.b), on obtient une meilleure concordance entre les deux courbes. En effet, la sonde calorimétrique n'est pas refroidie pendant la mesure. Le flux qu'elle détecte est donc moins important que celui obtenu par le HFM. En tenant compte des incertitudes, on peut dire que les valeurs de densité de flux d'énergie mesurées par la sonde et par le HFM sont en bon accord.

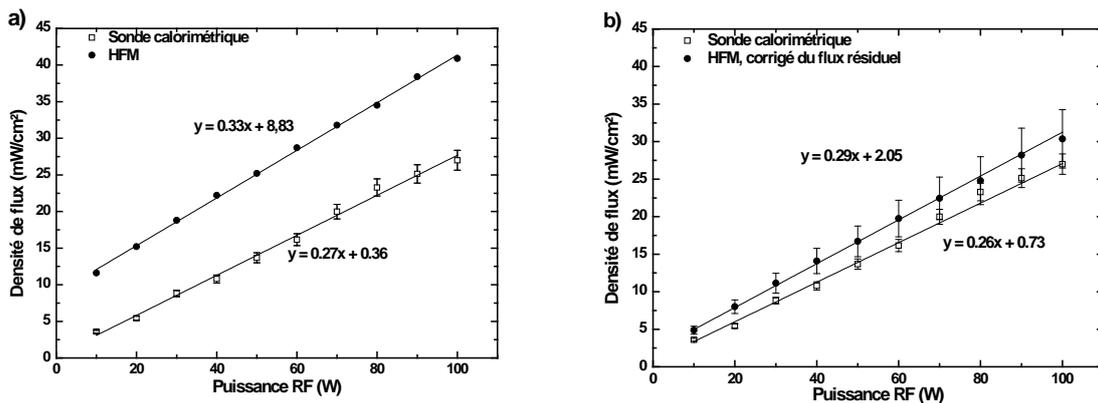


Figure 6 : Mesure du flux d'énergie dans une décharge capacitive asymétrique à l'aide d'une sonde calorimétrique et du HFM, en fonction de la puissance RF appliquée.

La conception de la sonde calorimétrique est très bon marché. Il est cependant possible d'effectuer des mesures de flux résolues spatialement [3] dans différents types de procédés plasma [2-3-7]. Néanmoins, l'interpolation du thermogramme obtenu par la sonde peut être

une source supplémentaire d'erreurs. De plus, la mesure doit nécessairement se faire sur un temps de deux à trois minutes pour la rendre exploitable. La sonde calorimétrique étant reliée à un circuit électronique, des problèmes de pollution du signal induits par la RF peuvent intervenir. Une solution future à cela serait d'intégrer un filtre au circuit.

Les méthodes de fabrication du HFM, faisant intervenir des procédés microélectroniques, rendent son coût élevé, mais permettent une excellente résolution temporelle (1 à 6 ms). Il est donc possible de mesurer sur des temps très courts (quelques secondes). Une nouvelle technique d'étalonnage en cours de développement au GREMI permettra d'accroître la sensibilité du HFM pour la détection des densités flux inférieures à la dizaine de mW/cm². Le temps de vie du HFM dépend essentiellement des densités de flux mesurées. Il peut être endommagé si elles sont trop importantes. Ce problème est toutefois réglé lorsque les mesures sont réalisées derrière un substrat (cas usuels).

5. Conclusion

Deux méthodes pour l'étude des transferts d'énergie plasma surface ont été présentées. Le HFM permet la mesure directe de la densité de flux d'énergie alors qu'elle est déduite de l'interpolation d'un thermogramme dans le cas de la sonde calorimétrique. Ces deux diagnostics ont été utilisés dans une décharge RF pour une gamme de puissance comprise entre 0 et 100 W. Bien que leurs fonctionnements soient différents, les résultats obtenus sont similaires. Le principal avantage de la sonde calorimétrique reste son coût de fabrication qui est très bas comparé à celui du HFM. Kersten et al. [1-3,7] ont aussi montré qu'elle fonctionnait dans de nombreux procédés plasma à haute densité d'énergie : "plasma jet", faisceau d'ions, décharge RF mais sans caractère dynamique. Le HFM possède un très bon temps de réponse (quelques millisecondes) qui pourrait être réduit à quelques microsecondes en l'absence de la couche de zynolite présente sur sa surface active. Ceci en fait un très bon outil pour la caractérisation de procédés transitoires et le rend très intéressant pour l'étude des plasmas pulsés (e.g. procédés HIPIMS) et des plasmas à faible densité d'énergie.

Références

- [1] H. Kersten, H. Deutsch, H. Steffen, G.M.W. Kroesen, R. Hippler, The energy balance at substrate surfaces during plasma processing, *Vacuum* 63 (2001) 385–431
- [2] M. Stahl, T. Trottenberg, and H. Kersten, A calorimetric probe for plasma diagnostics, *Rev. Sci. Instrum.* 81, 023504 (2010)
- [3] M. Wolter, M. Stahl and H. Kersten, Spatially resolved thermal probe measurement for the investigation of the energy influx in an rf-plasma, *Vacuum*, vol. 83, 768–772 (2008).
- [4] A. Thomann, N. Semmar, R. Dussart, J. Mathias and V. Lang, Diagnostic system for plasma/surface energy transfer characterization, *Rev. Sci. Instrum.*, vol. 77, 033501 (2006)
- [5] N. Semmar, A.L. Thomann, R. Dussart, J. Mathias, Mise au point d'un micro-fluxmètre pour la caractérisation des transferts d'énergie dans un plasma d'argon, Actes n°14, *SFT* (2006)
- [6] R. Wendt, K. Ellmer, K. Wiesemann, Thermal power at a substrate during ZnO:Al thin film deposition in a planar magnetron sputtering system, *J. Appl. Phys.*, 1997, 82, 2116-2122
- [7] D. Lundin, M. Stahl, H. Kersten and U. Helmersson, Energy flux measurements in high power impulse magnetron sputtering, *J. Phys. D. Appl. Phys.* 42 (2009)