

Секция D

ПРИМЕНЕНИЯ ЛАЗЕРОВ, ЛАЗЕРНЫЕ СИСТЕМЫ, ЛАЗЕРНО-ОПТИЧЕСКИЕ ТЕХНОЛОГИИ

УДК 537.523.9; 533.9...15; 533.9.082.5

Плотность гибридной плазмы, поддерживаемой СВЧ-излучением и СО₂-лазером

С.В. Автаева^{1,2}, В.Б. Доломанова^{1,2}, Р.С. Савельев², П.А. Пинаев¹,
А.Э. Медведев¹

¹ Институт лазерной физики СО РАН

630090, Новосибирск, Россия, пр. Лаврентьева, 15Б

² Новосибирский государственный технический университет
630073, Новосибирск, Россия, пр. К. Маркса 20, avtaeva_sv@laser.nsc.ru

Работа посвящена исследованию концентрации электронов гибридной плазмы атмосферного давления, поддерживаемой излучениями СВЧ-диапазона (2,47 ГГц) и СО₂-лазера (10,6 мкм) в камере экспериментального плазмохимического реактора, разработанного для исследования процесса синтеза алмазоподобных и других покрытий. Реактор создан на основе СВЧ-резонатора на ТМ₀₁₂-моде квазицилиндрической формы, в который одновременно с СВЧ-излучением вводится сфокусированное излучение СО₂-лазера. Исследованы контуры линии атомарного водорода H_a, излучаемые СВЧ- и гибридной плазмой в смесях H₂:Ag:CH₄. Контуры линии H_a в спектрах гибридной плазмы, в отличие от контуров этой линии, излучаемых СВЧ-плазмой, аппроксимируемых функцией Лоренца, имеют широкие крылья и описываются функцией Лоренца с двухконтурной аппроксимацией, что указывает на существенную пространственно-временную неоднородность гибридной плазмы. Измеренные по штарковскому уширению линий H_a концентрации электронов в СВЧ-плазме атмосферного давления лежат в диапазоне $5 \cdot 10^{14}$ – 10^{16} см⁻³. В гибридной плазме концентрация электронов, соответствующая контуру с меньшей полушириной, несколько превышает концентрацию электронов в СВЧ-плазме и лежит в диапазоне 10^{15} – $5 \cdot 10^{16}$ см⁻³. В случае фокусировки лазерного излучения в области сгустка СВЧ-плазмы концентрация электронов, измеренная по контуру с большей полушириной, составляет величину $\sim 10^{17}$ см⁻³.

Ключевые слова: СВЧ-разряд, лазерная плазма, концентрация электронов, штарковское уширение, двухконтурная аппроксимация, пространственно-временная неоднородность; microwave discharge, laser plasma, density of electrons, Stark broadening, two-contour approximation, spatio-temporal inhomogeneity.

Введение

Хорошо известны способы синтеза алмазных покрытий с применением СВЧ- и лазерной плазмы [1–3]. Однако, между основными параметрами этих источников плазмы (энергия и концентрация заряженных частиц) имеются значительные интервалы, которые не могут быть реализованы ни с помощью СВЧ, ни с помощью излучения СО₂-лазера. Высокая плотность заряженных частиц лазерной плазмы (10^{15} – 10^{17} см⁻³) обеспечивает большую скорость роста синтезируемого слоя, однако для лазерной плазмы характерна значительная неоднородность и небольшие площади синтезируемой поверхности [4]. Кроме того, лазерная плазма, как правило, имеет высокую газовую температуру, которая приближается к температуре электронов. Это существенно ограничивает применение лазерной плазмы для синтеза материалов. Напротив, в неравновесной СВЧ-плазме температуру газа существенно ниже температуры электронов, однако, невысокая плотность заряженных частиц (10^{10} – 10^{13} см⁻³) ограничивает скорости роста синтезируемой поверхности [5, 6]. Характерные скорости роста поликристаллических алмазных пленок в СВЧ-плазме, как правило, ограничиваются десятками микрон в час [7].

В настоящей работе исследуется концентрация электронов в гибридной плазме атмосферного давления, поддерживаемой излучениями СВЧ-диапазона (2,47 ГГц) и СО₂-лазера (10,6 мкм) в камере экспериментального плазмохимического реактора [8]. В гибридной плазме можно ожидать существенного увеличения плотности заряженных частиц при сохранении неравновесного состояния между температурами электронов и тяжелых частиц, что позволит увеличить скорости роста поликристаллических алмазных пленок.

Экспериментальная установка

Для создания гибридной плазмы использовался СВЧ-реактор на ТМ₀₁₂-моде, созданный на основе резонатора квазицилиндрической формы, служащего камерой реактора. Схема генерации гибридной плазмы в камере реактора показана на рис. 1. Малый 1 и большой 2 конусы камеры реактора соединены резьбой 3, позволяющей менять объем резонатора. В камеру-резонатор через ввод 6 подается газ (аргон, водород, метан), формирующий избыточное давление. В области основного максимума СВЧ-излучения происходит пробой газа с образованием СВЧ-плазмы 7. Длительность импульсов СВЧ-генератора от 0,5 мкс и выше, средняя СВЧ-мощность — до 1,5 кВт, импульсная мощность — до 7 кВт. Частота повторения импульсов — 1–150 кГц. Излучение СО₂-лазера 8, проходя через запредельный волновод 9, фокусируется линзой 10 в область СВЧ-плазмы, где формируется гибридная плазма 11. Струя плазмы 13 через сверхзвуковое сопло 12 направляется к подложке 14, на которой осуществляется синтез пленок.

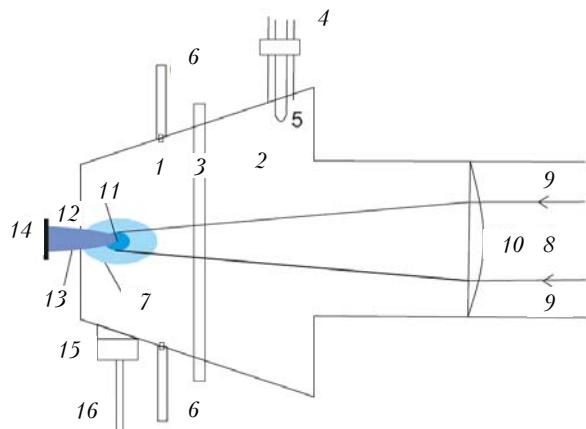


Рис. 1. Схема формирования гибридной плазмы: 1, 2 — малый и большой конусы резонатора; 3 — область соединения конусов, 4, 5 — кабель и штырь ввода СВЧ-излучения в резонатор; 6 — ввод газа; 7 — область СВЧ-разряда; 8 — излучение СО₂ лазера; 9 — запредельный волновод, 10 — длиннофокусная линза ($F = 250$ мм), 11 — область гибридной плазмы, 12 — сверхзвуковое сопло, 13 — струя продуктов плазмы, 14 — подложка, 15 — коллиматор излучения плазмы, 16 — оптоволокно спектроанализатора

Излучение плазмы отбирается коллиматором 15, поступает в световод 16 и далее в спектроанализатор высокого разрешения HDSA (ООО «АНГСТРЕМ», г. Новосибирск) с разрешением 0,2–0,3 Å в зависимости от длины волны (350–1000 нм).

Результаты и обсуждения

Исследовалась гибридная плазма в газовой смеси 95Н₂:3Ar:2CH₄ при давлении чуть выше атмосферного. Подводимая к разряду мощность \bar{P} составляла 570 Вт при частоте следования импульсов 1 кГц (скважность—5). СО₂-лазер использовался в импульсном режиме. Используемые частоты v и энергия лазерных импульсов $E_{\text{имп}}$, связанные соотношением $\bar{P} = E_{\text{имп}} \cdot v$, указаны в таблице.

Параметры излучения СО₂ лазера ($\lambda = 1076$ мкм)

Частота излучения, кГц	Средняя мощность излучения, Вт	Энергия импульса, мДж
3	170	56,7
15	500	33,3
30	700	23,3
80	700	8,7

В спектре излучения гибридной плазмы в смеси газов 95Н₂:3Ar:2CH₄, также как и в спектре СВЧ-разряда наблюдаются линии атомарного водорода серии Бальмера и слабые полосы системы Свана молекулярного углерода (C₂).

Высокая концентрация электронов в гибридной плазме приводит к заметному уширению линий атомарного водорода вследствие эффекта Штарка, что позволяет использовать его для измерения плотности электронов в такой плазме. Наиболее удобной для определения концентрации электронов по штарковскому уширению линий атомарного водорода серии Бальмера является линия H_B [9]. Однако, интенсивность линии H_B была мала для корректного измерения уширения линии и определения концентрации электронов. Поэтому для измерения плотности электронов использовалась линия атомарного водорода H_a.

Аппаратная функция регистрирующей спектральной системы измерялась с помощью гелий-неонового лазера. Анализ формы аппаратной функции показал, что она хорошо аппроксимируется функцией Гаусса

с полушириной $\Delta\lambda_a = 0,02$ нм. Аппаратное вместе с доплеровским уширение линии H_a по оценкам не превышает 0,04–0,05 нм. Экспериментально наблюдаемые контуры линии H_a намного шире контура, обусловленного доплеровским и аппаратным уширением, поэтому при анализе штарковского уширения линии H_a в гибридной плазме аппаратным и доплеровским уширением линии H_a можно пренебречь. Анализ формы контуров линии H_a показал, что они хорошо аппроксимируются двумя функциями Лоренца (двуухконтурная аппроксимация) и не могут быть аппроксимированы ни одной функцией Лоренца, ни функцией Фойгта. Типичный вид двухконтурной аппроксимации контуров линии H_a, излучаемых гибридной плазмой в смеси 95H₂:3Ar:2CH₄, функцией Лоренца представлен на рис. 2.

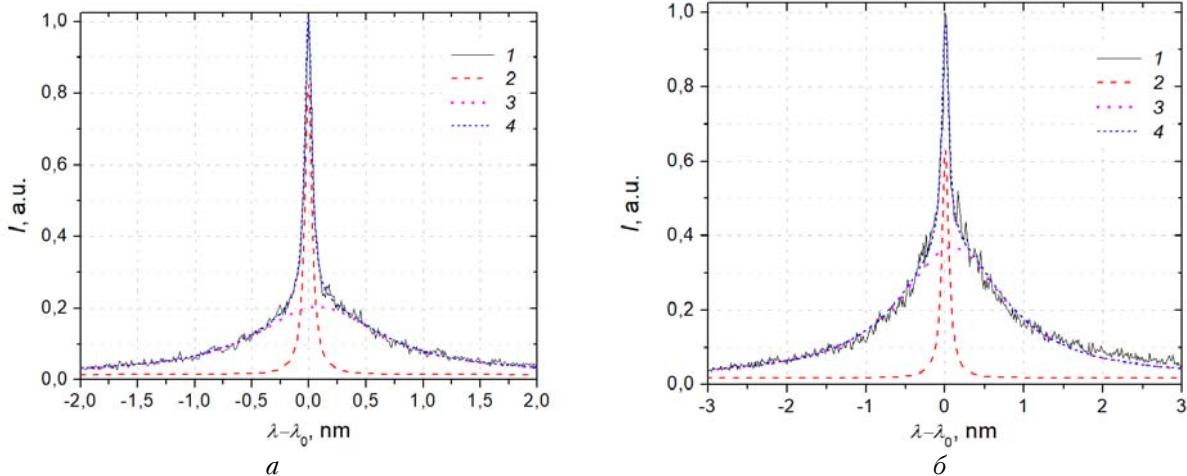


Рис. 2. Двуухконтурная аппроксимация формы контуров линии H_a, наблюдавшихся в спектрах излучения гибридной плазмы, функцией Лоренца; 1 – экспериментальный контур, 2 – центральный контур двухконтурной аппроксимации, 3 – широкий контур двухконтурной аппроксимации, 4 – двухконтурная лоренцевская аппроксимация. Частота следования импульсов CO₂ лазера: 3 кГц (а) и 30 кГц (б)

На рис. 3 представлены концентрации электронов, рассчитанные по полуширине каждого из контуров двухконтурной аппроксимации контуров линии H_a, наблюдавшейся в спектрах излучения гибридной плазмы в смеси 95H₂:3Ar:2CH₄. Как видно из рисунка концентрация электронов, рассчитанная по широкому контуру двухконтурной лоренцевской аппроксимации, составляет величину порядка 10¹⁷ см⁻³ и, вероятно, соответствует высоким концентрациям электронов в области гибридной плазмы в начальные моменты времени после прихода лазерного импульса. Концентрация электронов, рассчитанная по центральному узкому контуру, лежит в пределах 5 · 10¹⁴–10¹⁶ см⁻³ и соответствует периферийной области гибридной плазмы в более поздние времена эволюции детонационной волны, генерируемой лазерным импульсом, где и когда концентрация электронов по мере удаления от центра детонационной волны приближается к их концентрации в невозмущенной СВЧ-плазме.

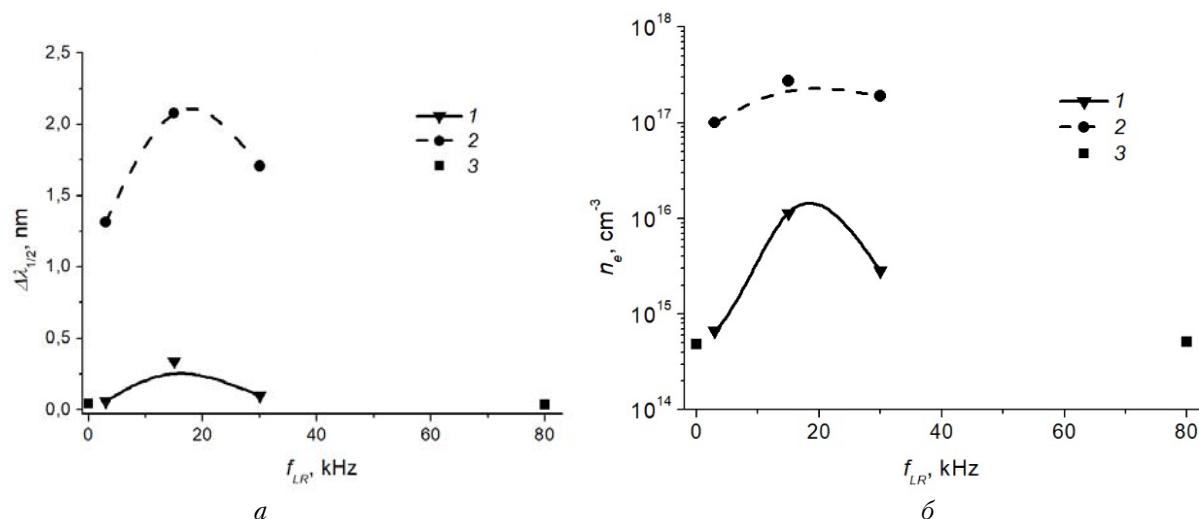


Рис. 3. Полуширина линии H_a (а) и концентрация электронов, измеренная по штарковскому уширению линии H_a, (б) в гибридной плазме в смеси 95H₂:3Ar:2CH₄; 1 – центральный контур двухконтурной лоренцевской аппроксимации, 2 – широкий контур двухконтурной лоренцевской аппроксимации, 3 – лоренцевский контур

Заключение

По штарковскому уширению линии атомарного водорода H_a исследована плотность электронов в гибридной плазме атмосферного давления в газовой смеси 95H₂:3Ar:2CH₄, поддерживаемой импульсно-периодическим СВЧ-излучением (2,47 ГГц) и излучением импульсного CO₂-лазера (10,6 мкм). Контуры линии H_a, наблюдаемые в излучении гибридного разряда, описываются двухконтурной аппроксимацией функцией Лоренца, что свидетельствует о пространственно-временной неоднородности гибридной плазмы. В гибридном разряде концентрация электронов испытывает пространственно-временные изменения в диапазоне от $5 \cdot 10^{14}$ – 10^{16} см⁻³ до 10^{17} см⁻³ и зависит от частоты и энергии импульсов излучения CO₂-лазера.

Благодарности. Авторы выражают признательность заведующему лаборатории мощных непрерывных лазеров ИЛФ СО РАН Смирнову А.Л. за предоставленную возможность проведения экспериментов с излучением CO₂ лазера.

Финансирование. Исследование выполнено при финансовой поддержке РНФ в рамках научного проекта РНФ № 25-29-00816.

Список литературы

1. Konov V.I., Prokhorov A.M., Uglov S.A., Bolshakov A.P., Leontiev I.A., Dausinger F., Hügel H., Angstenberger B., Sepold G., Metev S. CO₂ laser-induced plasma CVD synthesis of diamond // Appl. Phys. A. 1998. V. 66. P. 575–578.
2. Vikharev A.L., Gorbachev A.M., Lobaev M.A., Radishev D.B. Multimode cavity type MPACVD reactor for large area diamond film deposition // Diamond and Related Materials. 2018. V. 83. P. 8–14.
3. Weng J., Liu F., Xiong L.W., Wang J.H., Sun Q. Deposition of large area uniform diamond films by microwave plasma CVD // Vacuum. 2018. V.147, P.134-142.
4. Раизер Ю.П. Лазерная искра и распространение разрядов. М.: Наука, 1974. 308 с.
5. Yamada H., Chayahara A., Mokuno Y., Shikata S. Microwave plasma generated in a narrow gap to achieve high power efficiency during diamond growth // Diamond & Related Materials. 2009. V.18. P.117–120.
6. Gicquel A., Chenevier M., Hassouni Kh., Tserepi A., Dubus M. Validation of actinometry for estimating relative hydrogen atom densities and electron energy evolution in plasma assisted diamond deposition reactors // J. Appl. Phys. 1998. V. 83. P. 7504.
7. Ma Z., Wu C., Wang J., Zhao H., Zhang L., Fu Q., Wang C. Development of a plate-to-plate MPCVD reactor configuration for diamond synthesis // Diamond & Related Materials. 2016. V. 66. P. 135–140.
8. Медведев А.Э., Пинаев П.А. Лазерно-плазменный синтез при комплексном воздействии лазерной плазмы и СВЧ поля / XLVI Международная (Звенигородская) конференция по физике плазмы и УТС, 18–22 марта 2019 г. Сборник тезисов, С. 216.
9. Плазма в лазерах. Пер. с англ. / Под ред. Дж. Бекефи. Москва, Энергоатомиздат, 1982. 416 с.

S.V. Avtaeva, V.B. Dolomanova, R.S. Savelyev, P.A. Pinaev, A.E. Medvedev. Density of hybrid plasma supported by microwave radiation and CO₂ laser.

The paper is devoted to the study of the electron number density of an atmospheric pressure hybrid plasma supported by microwave radiation (2.47 GHz) and a CO₂ laser (10.6 μm) in the chamber of an experimental plasma-chemical reactor developed to study the synthesis of diamond-like and other coatings. The reactor is based on a microwave resonator on the TM₀₁₂ mode of a quasi-cylindrical shape, into which focused radiation of a CO₂ laser is introduced simultaneously with microwave radiation. The shapes of the atomic hydrogen H_a line emitted by microwave and hybrid plasma in H₂:Ar:CH₄ mixtures are studied. The shapes of the H_a line in the hybrid plasma spectra, in contrast to the shapes of this line emitted by microwave plasma, approximated by the Lorentz function, have wide wings and are described by the Lorentz function with a two-contour approximation, which indicates a significant spatio-temporal inhomogeneity of the hybrid plasma. The density of electrons in the atmospheric pressure microwave plasma measured by the Stark broadening of the H_a lines are in the range of $5 \cdot 10^{14}$ – 10^{16} cm⁻³. In the hybrid plasma, the density of electrons corresponding to the contour with a smaller half-width slightly exceeds the density of electrons in the microwave plasma and is in the range of 10^{15} – $5 \cdot 10^{16}$ cm⁻³. In the case of focusing laser radiation in the region of a microwave plasma bunch, the density of electrons measured by the contour with a larger half-width is $\sim 10^{17}$ cm⁻³.