

УДК 537.525.99

ИССЛЕДОВАНИЕ НЕПРЕРЫВНОГО СВЕРХВЫСОКОЧАСТОТНОГО РАЗРЯДА В ДВУХ ПЕРЕСЕКАЮЩИХСЯ ВОЛНОВЫХ ПУЧКАХ МИЛЛИМЕТРОВОГО ДИАПАЗОНА ДЛИН ВОЛН

А. Л. Вихарев¹, А. М. Горбачёв^{1,2}, Д. Б. Радищев¹, В. В. Чернов^{1*}, А. В. Козлов¹

¹ Институт прикладной физики РАН;

² Нижегородский госуниверситет им. Н. И. Лобачевского, г. Нижний Новгород, Россия

В работе представлены результаты исследования сверхвысокочастотного (СВЧ) разряда, создаваемого непрерывным излучением гиротрона с частотой 30 ГГц в смеси аргона и водорода с добавкой метана в области пересечения двух волновых пучков. Разряд поддерживался над подложкой и имел форму тонкого плазменного слоя. Методами оптической спектроскопии излучения проведены измерения температуры газа и концентрации электронов в плазме. Обсуждены особенности определения штарковского уширения спектральных линий атомарного водорода при невысокой (порядка 10^{13} см^{-3}) концентрации электронов. Представлены зависимости концентрации электронов и температуры газа от давления и состава газа, а также мощности падающего СВЧ излучения. Отмечены перспективы применения исследуемого разряда для плазмохимического осаждения алмазных плёнок из газовой фазы.

ВВЕДЕНИЕ

Исследования СВЧ разрядов в волновых пучках в диапазоне частот от 24 до 40 ГГц проводились в 1980-х годах с использованием мощных источников электромагнитного излучения — гиротронов и карсинотронов. В основном изучались динамика и пространственная структура СВЧ разрядов, создаваемых в импульсных волновых пучках с длительностью $10^{-8} \div 10^{-5}$ с и низкой частотой повторения [1–3]. Такие СВЧ разряды могут применяться, в частности, для создания искусственно ионизованной области в атмосфере [4] и накачки ультрафиолетовых газовых лазеров [3].

Исследования непрерывных СВЧ разрядов в волновых пучках в частотном диапазоне от 24 до 30 ГГц с использованием технологических гиротронов начались сравнительно недавно [5]. Такой разряд привлекателен как источник неравновесной плазмы для различных приложений, таких как очистка поверхности, получение тонких плёнок и изучение плазмохимических процессов в сверхчистых газах. Непрерывный СВЧ разряд может быть локализован в области усиленного электрического поля стоячей волны, сформированной пересекающимися волновыми пучками, и иметь форму тонкого плазменного слоя над поверхностью подложки. Такая форма разряда позволяет достигнуть высокий (более 200 Вт/см^3) темп поглощения электромагнитной энергии в единице объёма плазмы и обеспечить интенсивный поток радикалов на поверхность подложки большой площади, что представляет интерес как с точки зрения исследования свойств такого разряда, так и для различных его применений. В частности, разряд, созданный непрерывным СВЧ излучением, успешно использовался для осаждения алмазных плёнок из газовой фазы [6, 7].

В данной работе представлены результаты исследования непрерывного газового разряда, создаваемого и поддерживаемого непрерывным СВЧ излучением миллиметрового диапазона длин волн в двух пересекающихся над подложкой волновых пучках. Нами исследовались параметры

* chevva@appl.sci-nnov.ru

плазмы в аргон-водород-метановой газовой смеси на экспериментальной установке, созданной на базе гиротрона, генерирующего излучение с частотой 30 ГГц. В проведённых экспериментах полная мощность падающего излучения (в двух пучках) изменялась от 5,5 до 12 кВт, а давление газа — от 100 до 400 торр. Кинетическая температура газа, концентрация электронов и их зависимости от внешних параметров (мощности падающего СВЧ излучения, рабочего давления и состава газовой смеси) исследовались методами оптической эмиссионной спектроскопии линий атомарного водорода, аргона и радикала C_2 .

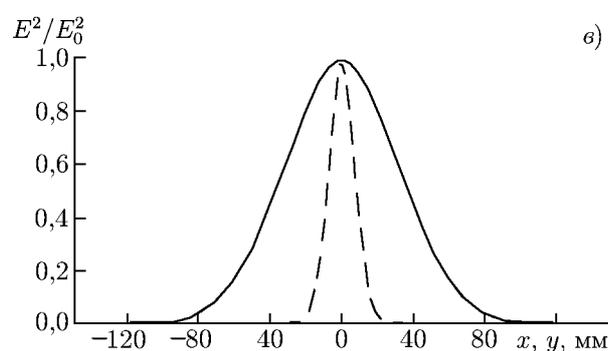
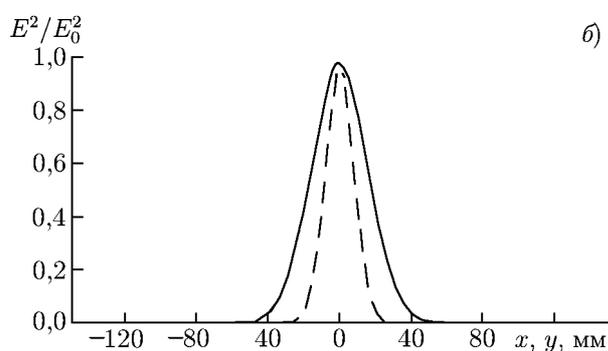
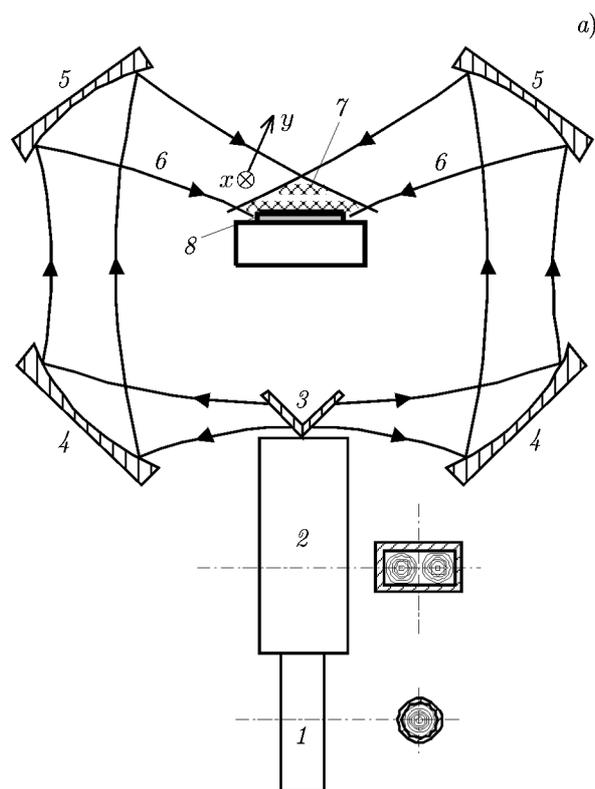
Оптические методы диагностики были выбраны потому, что они являются бесконтактными и не вносят возмущений в исследуемую плазму и в пространственное распределение СВЧ поля. Газовая кинетическая температура измерялась по спектру вращательной структуры перехода $d^3P_g \rightarrow a^3P_u$ (полоса Свана) радикала C_2 . Для определения концентрации электронов использовались измерения штарковского уширения линий излучения атомарного водорода хольцмарковскими полями. В нашем случае измерения концентрации электронов этим методом отличаются тем, что ожидаемая концентрация электронов была относительно небольшой, порядка 10^{13} см^{-3} (и близка к критическому значению для используемой частоты излучения 30 ГГц). Как будет показано далее, в наших условиях можно пренебречь влиянием внешнего СВЧ поля. Однако штарковское уширение за счёт хольцмарковского поля оказалось соизмеримым с уширениями, возникающими за счёт других эффектов. Это обстоятельство позволяет определить концентрацию электронов, но требует аккуратного учёта всех механизмов уширения линии излучения в плазме.

1. СВЧ РАЗРЯД В ДВУХ ПЕРЕСЕКАЮЩИХСЯ ВОЛНОВЫХ ПУЧКАХ

СВЧ разряд в двух пересекающихся волновых пучках исследовался на установке, созданной на базе гиротрона с частотой излучения 30 ГГц [6, 7]. Схема получения двух пересекающихся волновых пучков в разрядной камере установки приведена на рис. 1. Два фокусирующих зеркала 5 направляли СВЧ излучение в область над подложкой 7, около которой поддерживался СВЧ разряд. К зеркалам 5 излучение доставлялось через систему зеркал 3 и 4. Образование двух когерентных пучков с одинаковой интенсивностью происходило на выходе из сверхразмерного прямоугольного волновода 2 вследствие эффекта мультипликации изображения в ходе распространения электромагнитной волны [8]. Квазигауссов пучок подавался на вход волновода 2 из сверхразмерного круглого волновода с гофрированной поверхностью 1. Такой волновод обеспечивал распространение электромагнитной волны с близким к гауссову поперечным распределением поля. На вход этого волновода поступало линейно поляризованное СВЧ излучение от гиротрона. В такой схеме создания когерентных пучков напряжённость электрического поля в них была параллельна поверхности подложки (ТЕ-поляризация). при замене плоских зеркал 3 на гофрированные поляризация излучения в падающих на подложку волновых пучках поворачивалась на 90° . Это позволяло исследовать СВЧ разряд также и в пучках с ТМ-поляризацией. Подложка располагалась в фокальной области пучков. С помощью различных пар фокусирующих зеркал создавались две разные конфигурации пучков.

Исследования структуры СВЧ разряда и измерения параметров плазмы проводились в двух сериях экспериментов. В первой серии ширина каждого гауссова пучка (по уровню спада квадрата электрического поля в e раз) вдоль подложки в фокальной плоскости составляла 46 мм, рис. 1б (ось x). Во второй серии экспериментов ширина каждого гауссова пучка вдоль подложки в фокальной плоскости была увеличена в два раза и составляла 92 мм, рис. 1в. Это позволяло получить СВЧ разряд, покрывающий большую площадь подложки. В первой серии экспериментов исследовался разряд в волновых пучках с ТЕ-поляризацией, а во второй, помимо

Рис. 1. Панель *a*: схема получения двух пересекающихся волновых пучков: 1 — круглый гофрированный волновод, 2 — делитель волновых пучков, 3 — плоские зеркала, 4 — нижние фокусирующие зеркала, 5 — верхние фокусирующие зеркала, 6 — волновые пучки, 7 — область разряда, 8 — подложка. Панели *б*, *в* — рассчитанные распределения электрического поля в фокальной плоскости одного волнового пучка: сплошные линии соответствуют направлению x , перпендикулярному плоскости панели *a*, пунктирные линии — направлению y , перпендикулярному оси x



ТЕ-поляризации, был рассмотрен случай волновых пучков с ТМ-поляризацией. В проведённых экспериментах полная мощность падающего излучения (в двух пучках) изменялась от 5,5 до 12 кВт, а давление газа — от 100 до 400 торр. Для исследования СВЧ разряда была выбрана газовая смесь $\text{Ar}/\text{H}_2/\text{CH}_4$. В экспериментах относительное содержание метана CH_4/H_2 в газовой смеси поддерживалось равным 2%, а относительное содержание аргона $\text{Ar}/(\text{H}_2 + \text{Ar})$ варьировалось в диапазоне от 50 до 75%. Полный газовый поток равнялся 400 стандартным кубическим сантиметрам в минуту. Во всех экспериментах плазма была локализована над подложкой. Только в этой области напряжённость электрического поля превышала пороговое значение, требуемое для поддержания стационарной плазмы.

Проведённые эксперименты показали, что, в зависимости от поляризации СВЧ излучения, наблюдались различные пространственные структуры непрерывного разряда. На рис. 2*a* представлена фотография СВЧ разряда в пересекающихся волновых пучках с ТЕ-поляризацией, сделанная над подложкой с диаметром 75 мм. На рис. 2*б* также показана фотография разряда,

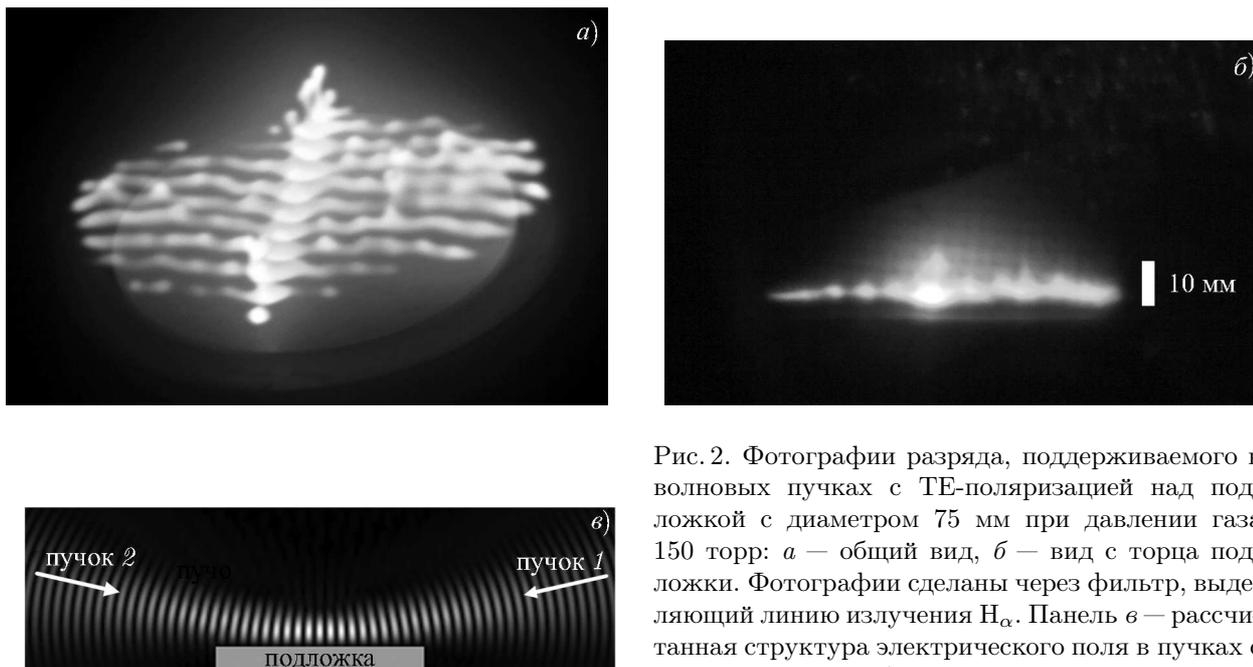


Рис. 2. Фотографии разряда, поддерживаемого в волновых пучках с ТЕ-поляризацией над подложкой с диаметром 75 мм при давлении газа 150 торр: *a* — общий вид, *б* — вид с торца подложки. Фотографии сделаны через фильтр, выделяющий линию излучения H_α . Панель *в* — рассчитанная структура электрического поля в пучках с ТЕ-поляризацией (напряжённость электрического поля перпендикулярна плоскости рисунка)

сделанная с торца подложки. Фотографии выполнены через светофильтр, выделяющий линию излучения H_α атомарного водорода. Из них видно, что разряд имел форму тонкого плазменного слоя с диаметром, равным диаметру подложки (75 мм) и толщиной около половины длины волны (5 мм). На рис. 2*б* показана рассчитанная структура электрического поля над подложкой до зажигания разряда. В области пересечения пучков формировалась стоячая волна с чередованием пучностей и узлов электрического поля вдоль поверхности подложки. После возникновения разряда плазма оставалась локализованной около подложки, однако она не повторяла полностью структуру поля. Такая схема эксперимента с двумя пересекающимися волновыми пучками решала проблему локализации (устойчивости) плазмы около подложки в широком диапазоне значений мощности СВЧ излучения и газового давления за счёт формирования указанной стоячей электромагнитной волны.

Разряд, создаваемый двумя пересекающимися волновыми пучками с ТЕ-поляризацией, имел неоднородную структуру вдоль подложки в направлении, перпендикулярном плоскости рис. 2*в* (см. рис. 2*а*). Она была слоистой со стратами, перпендикулярными напряжённости электрического поля, во всём диапазоне давлений. Мы предполагаем, что, как и в случае импульсного СВЧ разряда в волновых пучках [2], разряд дробился вследствие мелкомасштабной ионизационной неустойчивости в разрядной плазме. Плазма расслаивалась в направлении напряжённости электрического поля (рис. 3*а*) вследствие плазменно-резонансной неустойчивости [9]. В СВЧ разряде такая неустойчивость проявляется в диапазоне давлений, в котором частота столкновений электронов ν порядка частоты волны ω . Вследствие нагрева газа данное условие, как будет понятно из оценок и проведённых измерений газовой температуры, выполнялось в наших экспериментах во всём диапазоне давлений. Для СВЧ разряда в пересекающихся пучках с ТМ-поляризацией страты не наблюдались и неоднородность плазмы была слабо выражена (см. рис. 3*б*).

Насколько велик нагрев газа в разрядной плазме с таким пространственным распределением и каково соотношение между частотой столкновений и частотой СВЧ поля можно понять из простейших оценок. Для свободно локализованного СВЧ разряда, поддерживаемого излучением с частотой 30 ГГц, ожидаемая концентрация электронов должна быть меньше или порядка

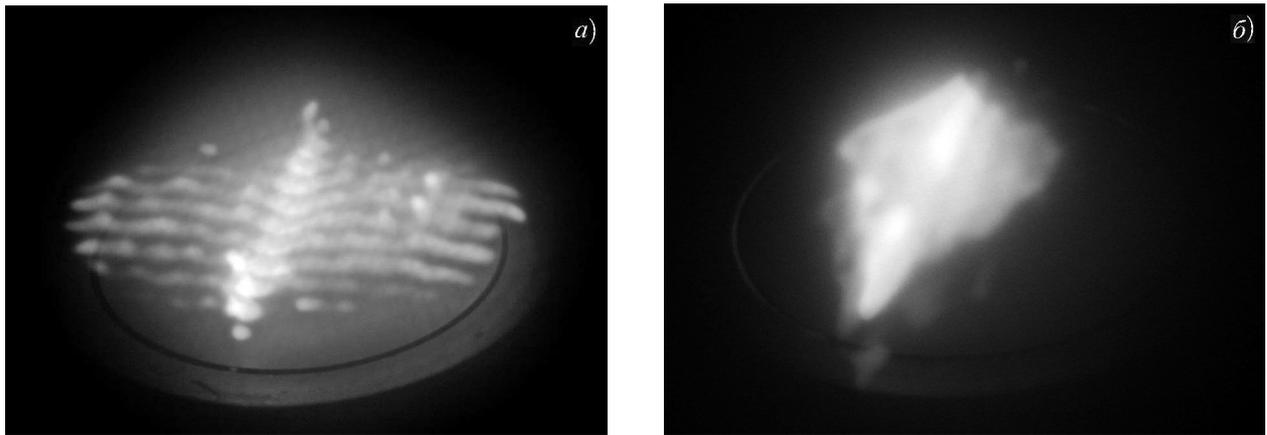


Рис. 3. Фотографии разряда, поддерживаемого в волновых пучках с ТЕ-поляризацией (а) и ТМ-поляризацией (б) над подложкой с диаметром 75 мм при давлении газа 150 торр

критической величины 10^{13} см^{-3} [2]. Для оценки температуры газа рассмотрим СВЧ разряд в атмосфере водорода при давлении $p_0 = 100$ торр и мощности падающего излучения 10 кВт. Считаем, что в стационарном случае поглощённая энергия в основном уносится из разряда за счёт теплопереноса в газе, и пренебрегаем при этом излучением плазмы. Теплоперенос разумно разделить на две части: одна определяется теплопроводностью молекулярного водорода, а другая — выносом атомарным водородом энергии, приобретаемой им за счёт диссоциации. Необходимо отметить, что коэффициент диффузии атомарного водорода в молекулярном водороде значительно больше, чем коэффициент диффузии молекулярного водорода в молекулярном водороде, т. е. процессы переноса атомарным водородом происходят быстрее. Несмотря на то, что степень диссоциации в наших условиях мала, уносимая атомарным водородом энергия настолько велика, что сток энергии для этих двух механизмов одного порядка величины. Учитывая довольно близкое расположение разряда у подложки и большую длину диффузии (средняя длина диффузии атомарного водорода в газе от места его появления до места его рекомбинации), можно говорить о резком градиенте концентрации атомарного водорода у подложки. Это приводит к тому, что подложка в основном нагревается за счёт потока атомарного водорода и его рекомбинации на её поверхности. Как будет показано далее, теплоперенос атомарным водородом достаточно резко зависит от температуры газа, что позволяет сделать приближённую оценку температуры.

Реакция диссоциации молекулярного водорода с образованием атомарного водорода в объёме газа описывается следующей химической формулой [10]:



Данная реакция эндотермическая, т. е. атомарный водород уносит с собой энергию, удельная величина которой

$$Q = 103 \text{ ккал/моль} = 7,2 \cdot 10^{-19} \text{ Дж/атом}. \quad (2)$$

Коэффициент диффузии атомарного водорода в молекулярном водороде [11]

$$D_{\text{H}}[\text{см}^2/\text{с}] = 9,48 \cdot 10^{-4} (T[\text{K}])^{1,72}. \quad (3)$$

Предполагаем, что диффузия атомарного водорода ограничена процессами рекомбинации. Поэтому для вычисления длины диффузии оценим сначала скорость рекомбинации атомарного водорода, которая определяется по формуле [10]:

$$\nu_{\text{рек}}[\text{с}^{-1}] = k N_{\text{H}} N_{\text{H}_2} = 2,7 \cdot 10^{-31} (T[\text{K}])^{-0,6} \alpha (N_{\text{H}_2}[\text{см}^{-3}])^2, \quad (4)$$

$$k[\text{см}^6/\text{с}] = 2,7 \cdot 10^{-31} (T[\text{K}])^{-0,6}, \quad (5)$$

где

$$\alpha = N_{\text{H}}/N_{\text{H}_2} \quad (6)$$

— степень диссоциации атомарного водорода. Из уравнения состояния идеального газа можно получить следующее выражение для концентрации молекулярного водорода при давлении 100 торр:

$$N_{\text{H}_2}[\text{см}^{-3}] = \frac{9,5 \cdot 10^{20}}{T[\text{K}]} \quad (7)$$

Таким образом, выражение для длины диффузии будет иметь вид

$$l_{\text{D}} = \sqrt{D_{\text{H}}/\nu_{\text{рек}}} = 6 \cdot 10^{-8} (T[\text{K}])^{2,16} \alpha^{-1/2} \text{ см.} \quad (8)$$

Как можно видеть из формулы (8), длина диффузии составляет величину порядка 1 см даже при низких (1000 К) температурах вблизи подложки и низкой степени диссоциации ($\alpha \approx 0,01$). Таким образом, длина диффузии больше, чем характерное расстояние между разрядом и подложкой $l_{\text{подл}} = 5$ мм. А при более высоких температурах длина диффузии значительно превышает $l_{\text{подл}}$. Таким образом, характерный пространственный масштаб изменения концентрации атомарного водорода определяется расстоянием $l_{\text{подл}}$, а не длиной диффузии.

Поток атомарного водорода определяется по формуле

$$F = D_{\text{H}} |\nabla N_{\text{H}}| = D_{\text{H}} \frac{\alpha N_{\text{H}_2}}{l_{\text{подл}}}, \quad (9)$$

$$F[\text{см}^{-2} \cdot \text{с}^{-1}] = 9 \cdot 10^{17} \frac{\alpha (T[\text{K}])^{0,72}}{l_{\text{подл}}[\text{см}]} \quad (10)$$

Площадь подложки S с диаметром 75 мм равна примерно 44 см². Умножая поток атомарного водорода на площадь подложки и энергию, выделяемую при рекомбинации, получаем мощность тепла, идущего в подложку за счёт рекомбинации на её поверхности:

$$P_{\text{подл}} = FQS. \quad (11)$$

Если оценивать степень диссоциации α из соображений термического равновесия между процессами термодиссоциации молекулярного водорода и рекомбинации атомарного водорода, то для температур 2500, 3000 и 3500 К получим 0,04; 0,25 и 1 соответственно [9]. Мощность нагрева подложки, оценённая из соотношения (11), будет равна 0,65; 4,6; 20,7 кВт соответственно. Из полученных данных ясно, что при мощности падающего излучения 10 кВт температура газа не должна превышать 3500 К. Такая верхняя граница связана с тем, что при такой температуре 50% молекулярного водорода диссоциировано, и теплоёмкость данной смеси при выбранном давлении достигает своего максимума [12]. Отметим, что в условиях наших экспериментов сток энергии через систему охлаждения подложки составлял порядка 3 кВт при мощности падающего излучения 10 кВт. Таким образом, простейшие оценки показывают, что температура газа T в создаваемом нами около подложки СВЧ разряде должна лежать в

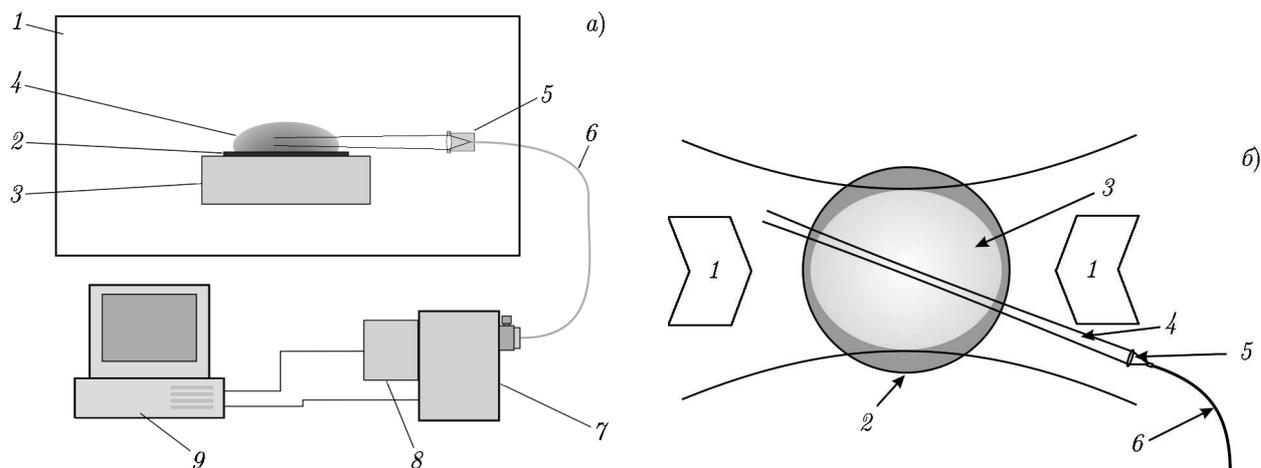


Рис. 4. Схема оптической диагностики (а): 1 — камера, 2 — подложка, 3 — держатель подложки, 4 — СВЧ разряд, 5 — линза, 6 — световод, 7 — спектрометр «Horiba Jobin Yvon FHR-1000», 8 — ПЗС-матрица, 9 — компьютер. Схема измерений характеристик оптического излучения плазмы над подложкой (б): 1 — падающие пучки, 2 — подложка, 3 — плазма, 4 — луч зрения, 5 — линза, 6 — световод

диапазоне $3\,000 \div 3\,500$ К. При такой температуре эффективная частота столкновений электронов с нейтралами, которую можно оценить из простой формулы

$$\nu[\text{с}^{-1}] = 1,2 \cdot 10^{12} p_0[\text{торр}]/T[\text{К}], \quad (12)$$

будет порядка частоты волны ω . Таким образом, разрядная плазма удовлетворяет условиям развития плазменно-резонансной неустойчивости [2].

Приведённые оценки выполнены для разряда в водороде, тогда как используемая в эксперименте газовая смесь содержит большое количество аргона. Как известно, коэффициент диффузии атомарного водорода в аргоне приблизительно на порядок меньше, чем в молекулярном водороде. Кроме того, ошибка в определении температуры может быть связана и с оценкой степени диссоциации водорода. Дело в том, что при концентрации электронов порядка 10^{13} см^{-3} заметную роль играет механизм диссоциации электронным ударом. В этом случае задача определения коэффициента диссоциации сильно усложняется. Однако, если предполагать, что степень диссоциации составляет величину порядка нескольких десятков процентов, вывод из наших рассуждений остаётся прежним. Для получения более точных значений концентрации электронов и температуры газа, а также их зависимостей от других макроскопических параметров системы, собственно и были проведены описываемые ниже эксперименты. Сделанные оценки, несмотря на свою грубость, были необходимы, чтобы определить диапазон измеряемых величин и выбрать метод диагностики.

2. ИЗМЕРЕНИЯ ТЕМПЕРАТУРЫ ГАЗА И ЭЛЕКТРОННОЙ КОНЦЕНТРАЦИИ

Кинетическая температура газа, электронная концентрация и их зависимости от внешних параметров (мощности падающего СВЧ излучения, рабочего давления и состава газовой смеси) были изучены методом оптической эмиссионной спектроскопии. Подробно эти зависимости исследовались для СВЧ разряда в двух пересекающихся волновых пучках с ТЕ-поляризацией. Схема оптической диагностики представлена на рис. 4. Свет, излучаемый плазмой, собирался кварцевой короткофокусной линзой и поступал на вход световода. Из световода излучение поступало

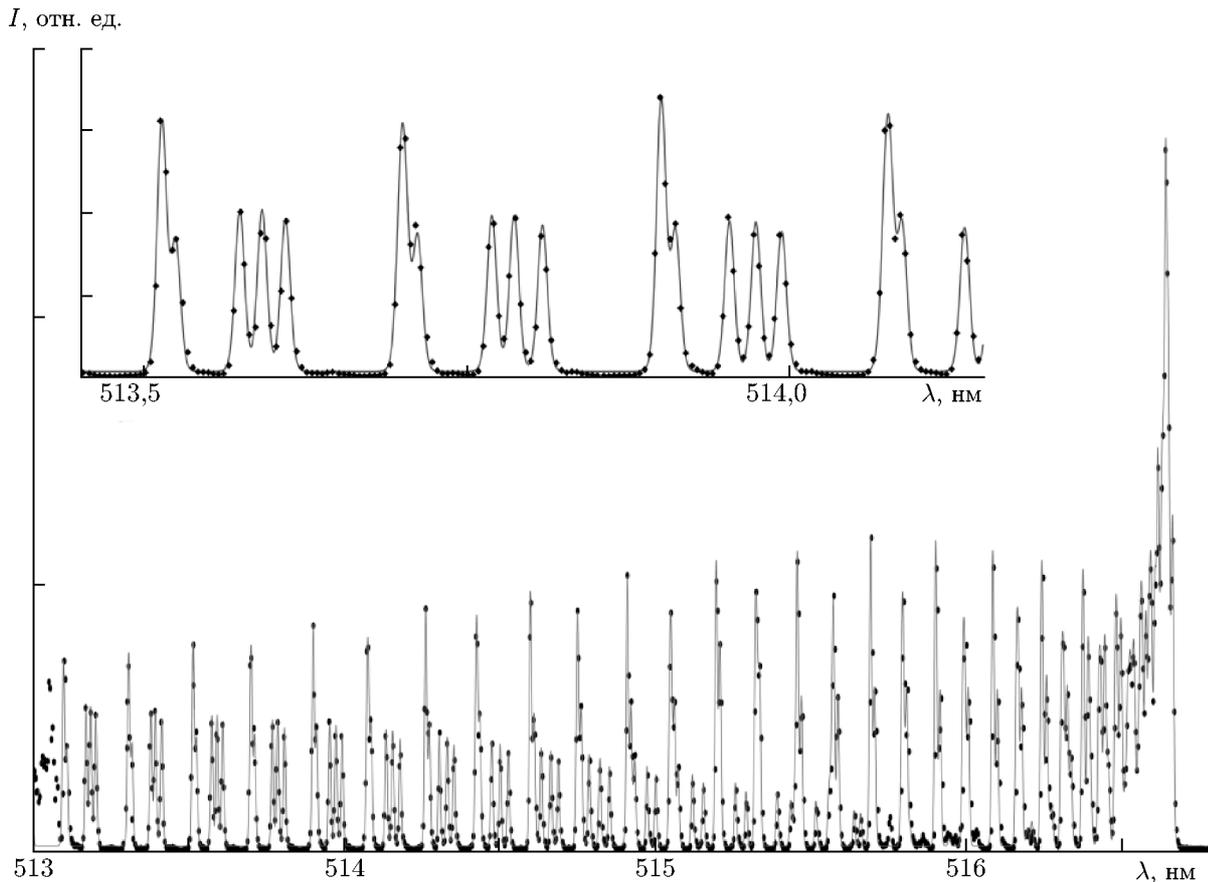


Рис. 5. Примеры аппроксимации экспериментальных данных (точки) расчётной спектральной интенсивностью I (сплошная линия) для эмиссионного излучения при переходе $d^3\Pi_g \rightarrow a^3\Pi_u$ радикала C_2 (на врезке показан участок спектра в увеличенном виде)

на вход спектрометра «Horiba Jobin Yvon FHR-1000», спектр регистрировался термоэлектрически охлаждаемой матрицей «Horiba Synapse CCD-2048×512», соединённой со спектрометром, и записывался на компьютер. Необходимо отметить, что, поскольку анализируемое излучение собирается вдоль луча, проходящего параллельно подложке на высоте 10 мм от неё и направленного под углом к плазменным образованиям (рис. 2), полученные значения являются усреднёнными по пространству.

Первым параметром, исследуемым в данном эксперименте, была кинетическая температура газа T . Проведённые ранее эксперименты показали, что для измерения температуры газа в углеродосодержащей плазме целесообразно использовать спектр излучения перехода $d^3\Pi_g \rightarrow a^3\Pi_u$ (полоса Свана) радикала C_2 , имеющего хорошо изученную и легко анализируемую вращательную структуру [13]. Радиационное время жизни уровня $d^3\Pi_g$ больше, чем время свободного пробега между столкновениями [14], вращательные постоянные для уровней $d^3\Pi_g$ и $a^3\Pi_u$ близки (1,62 и 1,74 соответственно). Поэтому распределение интенсивностей излучения $I(\lambda)$ при переходах с различных вращательных подуровней уровня $d^3\Pi_g$ должно хорошо описываться больцмановским распределением с вращательной температурой, близкой к газовой кинетической температуре. Для определения температуры мы численно аппроксимировали экспериментальные данные (рис. 5) расчётным спектром. Необходимые постоянные для расчёта вращательного спектра молекулы C_2 были взяты из работ [15, 16], аппаратная функция спектрометра была аппроксимирована

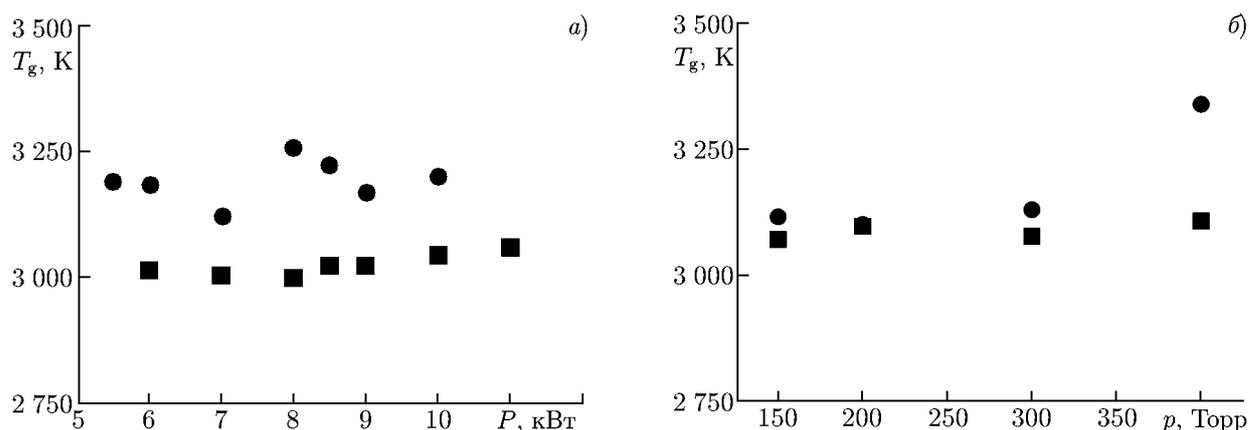


Рис. 6. Зависимость температуры газа от мощности падающего СВЧ излучения (а, при давлении газа 150 торр) и от давления газа (б, при мощности падающего СВЧ излучения 8 кВт) для пучков с диаметром 46 мм (точки) и 92 мм (квадраты) при содержании метана 2% и аргона 65%

после проведённых измерений спектра тлеющего разряда в неоне.

Вращательная структура перехода $d^3\Pi_g \rightarrow a^3\Pi_u$ отличается чередованием в хвосте канта (при больших значениях вращательного квантового числа, рис. 5) линий Р и R ветвей с существенно различными квантовыми числами. При этом разность длин волн линий достаточна для их идентификации даже приборами с невысоким спектральным разрешением. За счёт этого даже при небольших вариациях вращательной температуры происходило заметное изменение формы спектра в хвосте канта, что существенно увеличивало точность измерения вращательной температуры по сравнению с измерениями, проводимыми по неразрешённой вращательной структуре (как, например, у молекулярного азота), и обеспечивало меньшую чувствительность к неточностям аппроксимации спектра. Помимо аппаратной функции учитывалось также доплеровское уширение для фиксированной температуры 3200 К (характерной для проводимых измерений). При варьировании температуры, используемой для расчёта уширения, от 3000 до 3500 К определяемая аппроксимацией спектра вращательная температура изменялась менее чем на 100 К. Таким образом, связанная с доплеровским уширением погрешность определения вращательной температуры относительно невелика. Случайная погрешность измерения кинетической температуры газа составляла не более 50 К. Она оценивалась путём анализа результатов многократных измерений кинетической температуры газа при идентичных условиях.

Измерения кинетической температуры газа в разряде были проведены в газовой смеси $Ar/H_2/CH_4$ при различных концентрациях аргона ($Ar/(H_2 + Ar) = 50, 65$ и 75%). Зависимости кинетической температуры газа от мощности падающего СВЧ излучения и от давления в газовой смеси представлены на рис. 6а и б соответственно.

Как было указано выше, регистрируемое спектрографом излучение собиралось из протяжённой области разряда. Таким образом, численная аппроксимация выполнялась для суммы излучений из разных точек пространства. Полученная температура при этом являлась усреднённой. Как было показано в работе [17], при наших условиях газовая кинетическая температура ограничена сверху потерями тепловой энергии на термодиссоциацию молекулярного водорода, а основной перенос тепла в активной части разряда обеспечивает диффузия атомарного водорода, которая быстро выравнивает температуру в пространстве. Поэтому температура внутри разряда лишь слабо неоднородна. Таким образом, измеряемая температура должна соответствовать среднему значению в объёме разряда.

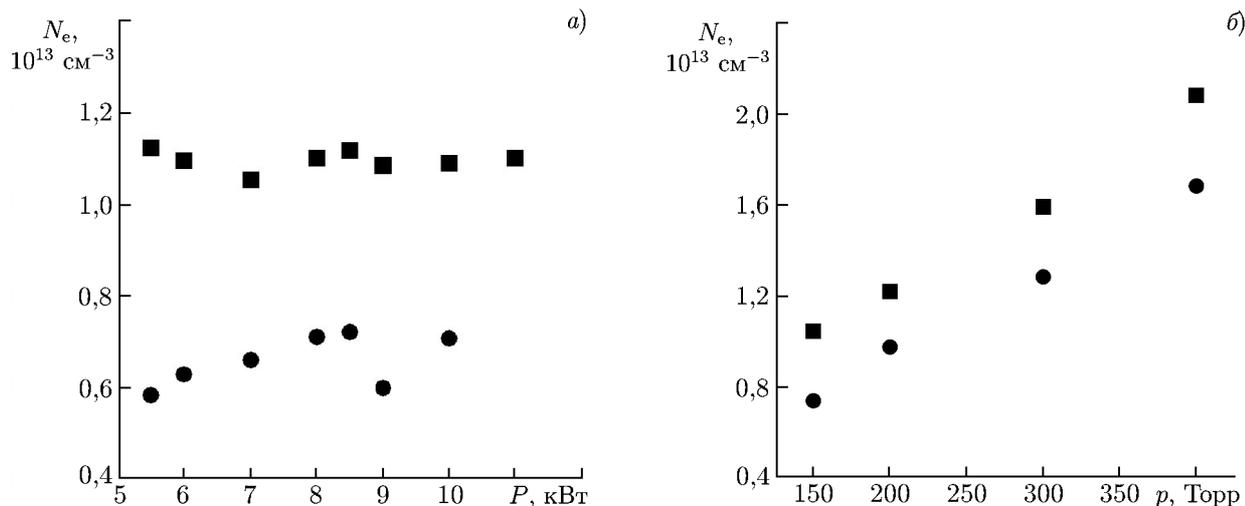


Рис. 7. Зависимость электронной концентрации от мощности падающего СВЧ излучения (а, при давлении газа 150 торр) и от давления газа (б, при мощности падающего СВЧ излучения 8 кВт) для пучков с диаметром 46 мм (точки) и 92 мм (квадраты) при содержании метана 2% и аргона 65%

Вторым параметром, измеряемым в данном эксперименте, была электронная концентрация N_e . Для её определения проводилось измерение спектрального профиля излучения линий бальмеровской серии атома водорода и выделение из него штарковского уширения, которое в наших условиях имеет сильную зависимость от N_e .

Экспериментально измеренные спектральные интенсивности линий излучения определяются свёрткой нескольких профилей уширения: профиля штарковского уширения хольцмарковскими полями, создаваемыми заряженными частицами в плазме; штарковского уширения внешним СВЧ полем; доплеровского уширения за счёт теплового движения атомов; тонкой структуры уровней атома водорода; столкновительного уширения; собственной ширины линии; профиля аппаратной функции спектрального прибора. Оптимальным для определения концентрации электронов оказалось использование линии H_β атомарного водорода. Уширение линии H_α слабее зависит от электронной концентрации, для неё также может оказаться существенным самопоглощение. Интенсивность же линии H_γ невелика, поэтому она может оказаться зашумлённой, что снижает точность измерения её ширины. Кроме того, профиль штарковского уширения линии H_γ сильнее зависит от температуры электронов [18]. Нами проводились измерения концентрации N_e как по линии H_β , так и по линии H_γ . Измерения по линии H_γ в целом совпадают с измерениями по линии H_β , но здесь эти данные не приведены в связи с их большей погрешностью.

Общее наблюдаемое уширение линии H_β составило около $35 \div 40$ пм (полная ширина на половине высоты). Оценим вклад различных механизмов уширения. Штарковское уширение хольцмарковскими полями в наших условиях, когда концентрация электронов близка к критической, можно предварительно оценить на уровне 10 пм. Типичная газовая кинетическая температура составляла 3200 К (рис. 7 и 8), доплеровское уширение при этом имеет величину около 20 пм [19]. Аппаратная функция измерялась по излучению тлеющего разряда в неоне, её ширина составила 23 пм. Точный учёт всех уширений, в том числе аппаратной функции, является важным для определения концентрации электронов. Для нахождения аппаратной функции были измерены профили нескольких десятков линий излучения неона, отобраны линии с достаточной интенсивностью и не перекрывающиеся с другими линиями, и определён усреднённый профиль уширения с учётом слабой зависимости ширины аппаратной функции от длины волны. Погрешность определения ширины аппаратной функции при этом составила менее 1 пм.

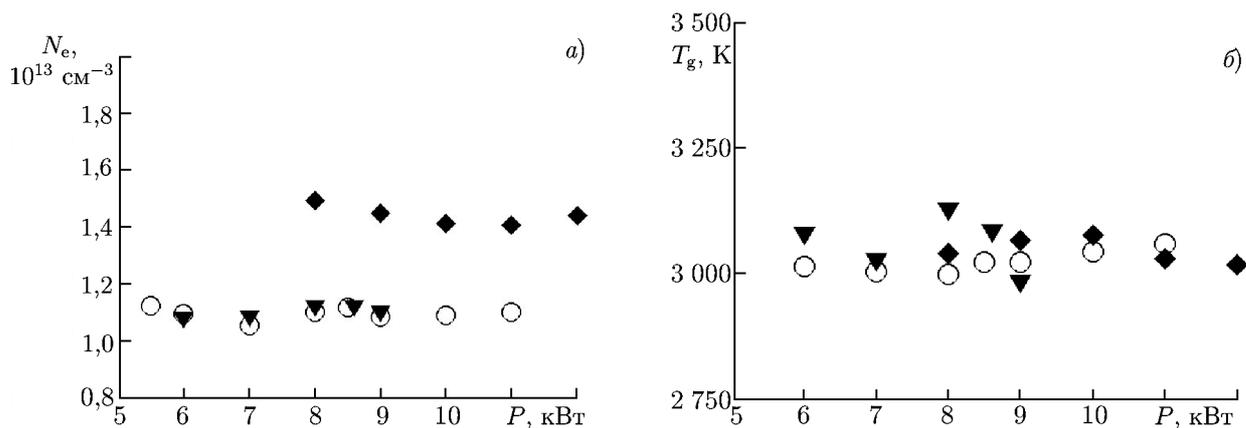


Рис. 8. Зависимость электронной концентрации (а) и температуры газа (б) от мощности падающего СВЧ излучения для различного содержания аргона в газовой смеси (\blacklozenge — 50 %, \circ — 65 %, \blacktriangledown — 75 %) при давлении 200 торр и содержании метана 2 %

Тонкая структура излучения линии H_β атомарного водорода представляет собой сложную систему линий определённой интенсивности, которая существенно влияет на форму спектральной линии H_β . Максимальное расщепление внутри тонкой структуры линии H_β атомарного водорода составляет около 9 пм [20], поэтому в нашем случае её учёт является необходимым. При учёте тонкой структуры мы пренебрегли лэмбовским сдвигом, вносящим незначительные изменения в тонкую структуру по сравнению с её максимальным расщеплением. Оценки столкновительного уширения [21] и собственной ширины линии показывают, что в совокупности они не превышают 1 пм. Таким образом, их вкладом в общее уширение можно пренебречь.

Влияние штарковского уширения внешним СВЧ полем в условиях проводимых экспериментов пренебрежимо мало по причинам, рассмотренным ниже. Поэтому становится ясно, что для определения концентрации N_e необходимо измерение штарковского уширения линии излучения H_β хольцмарковскими полями, имеющего величину порядка 10 пм, что, с учётом в несколько раз большего суммарного уширения, требует аккуратного учёта всех факторов. Формулы суммирования уширений не обеспечивают достаточной точности, поэтому необходимо использовать свёртку точных профилей, соответствующих различным компонентам уширения. Для расчёта профиля штарковского уширения заряженными частицами использовалась информация из статьи [22], для определения доплеровского уширения использовалась температура, измеренная по вращательной структуре излучения перехода $d^3\Pi_g \rightarrow a^3\Pi_u$ (полоса Свана) радикала C_2 . Зная профили доплеровского уширения, тонкой структуры и аппаратной функции спектрометра, численно подбиралась концентрация электронов, при которой расчётная форма спектра (т. е. свёртка всех профилей уширения) оказывалась наиболее близкой к экспериментальным данным.

Штарковское уширение внешним СВЧ полем можно рассмотреть отдельно от уширения хольцмарковскими полями, поскольку характерные времена изменения соответствующих полей существенно различаются. При воздействии на атом внешнего гармонического поля в спектре его излучения кроме основной линии излучения появляются так называемые спутники Блохинцева [23], расположенные с шагом по частоте, соответствующем частоте внешнего поля, и имеющие амплитуды, описываемые функциями Бесселя $J_s(n)$, где s — номер спутника (0 — основная линия), а n — индекс модуляции (т. е. отношение ширины статического расщепления уровня при напряжённости, равной амплитуде СВЧ волны, к шагу по частоте между спутниками).

В нашем случае в отсутствие плазмы СВЧ поле в фокальной области на оси пучков при различных мощностях излучения и геометрических размерах пучков варьировалось от 350 до

700 В/см. После зажигания разряд имел неоднородную слоистую структуру со стратами, перпендикулярными напряжённости электрического поля, во всём диапазоне давлений газа. Если расслоение плазмы в направлении напряжённости электрического поля возникало вследствие плазменно-резонансной неустойчивости, то поле в плазме могло локально усиливаться. Напряжённость поля в плазме можно грубо оценить как поле внутри однородного плазменного цилиндра с диаметром, много меньшим длины волны, и ориентированного перпендикулярно внешнему переменному электрическому полю:

$$E = 2E_0/(1 + \varepsilon). \quad (13)$$

Здесь E_0 — среднеквадратичная напряжённость внешнего электрического поля, ε — диэлектрическая проницаемость плазмы. При концентрации электронов, близкой к критической, величина $|\varepsilon| \ll 1$. Поэтому, как видно из выражения (13), локальное поле в плазме будет примерно равно $2E_0$. В условиях резонанса внутри наблюдаемых страт напряжённость электрического поля могла достигать $700 \div 1400$ В/см. В таком поле простая оценка штарковского уширения по формуле Эпштейна—Шварцшильда [24]

$$\Delta\omega = \frac{3h}{4\pi m e} E \quad (14)$$

даёт уширение $2 \div 4,7$ пм, где h — постоянная Планка, m и e — масса и элементарный заряд, соответственно. Однако на самом деле влиянием уширения внешним СВЧ полем можно пренебречь [25], поскольку шаг между спутниками для частоты излучения 30 ГГц составляет 23 пм, что при напряжённости поля 1400 В/см даёт индекс модуляции 0,1. В результате интенсивность излучения ближайших спутников составляет менее 1% от интенсивности излучения основной линии. Случайная погрешность измерения концентрации электронов была не более 10^{12} см⁻³. Она оценивалась путём анализа результатов многократных измерений концентрации электронов при идентичных условиях.

Как было указано выше, регистрируемое спектрографом излучение усреднялось по разряду вдоль луча наблюдения. Как видно из рис. 2, светимость разряда имеет существенную неоднородность с масштабом порядка нескольких миллиметров. На масштабе же порядка диаметра подложки неоднородность невелика. Поскольку светимость определяется концентрацией атомарного водорода, находящегося в возбуждённом состоянии, а основным каналом его перехода в это состояние является возбуждение электронным ударом, распределение концентрации электронов близко к распределению светимости. Однако поскольку при усреднении интенсивности более яркие области (т. е. область с большей концентрацией электронов) дают больший вклад в суммарную интенсивность, измеряемая усреднённая концентрация электронов не должна сильно отличаться от пиковой концентрации. Результаты измерений электронной концентрации в плазме разряда при изменяющихся мощности падающего СВЧ излучения и давлении газа представлены на рис. 7а и б соответственно. Зависимости электронной концентрации N_e и температуры газа от мощности падающего СВЧ излучения для различных составов газовой смеси приведены на рис. 8а и б соответственно.

3. ОБСУЖДЕНИЕ РЕЗУЛЬТАТОВ

Полученные результаты исследования параметров СВЧ разряда, поддерживаемого в двух пересекающихся пучках, интересно сравнить с измеренными ранее параметрами разряда в четырёх пересекающихся пучках [6, 26, 27]. Разряд в четырёх пучках также имел форму плазменного диска, но значительно более толстого. Концентрация электронов и температура газа для разрядов

в четырёх и двух пересекающихся волновых пучках имели одинаковые зависимости от мощности падающего СВЧ излучения, рабочего давления и состава газовой смеси. Средняя электронная концентрация в разряде в двух волновых пучках примерно на $10 \div 50\%$ (в зависимости от давления газа) больше, чем в разряде в четырёх пересекающихся пучках. Проведённые эксперименты показали, что установка с двумя пучками значительно проще в отношении настройки и поддержания непрерывного СВЧ разряда. Кроме того, она позволяет также изменять размеры плазменного слоя над подложкой, варьируя диаметр пересекающихся пучков.

Для разряда в двух пересекающихся волновых пучках с ТЕ-поляризацией, как можно видеть из рис. 7–8, электронная концентрация и температура газа слабо зависят от мощности падающего излучения, но наблюдается их зависимость от давления и состава газовой смеси. Отсутствие зависимости от мощности падающего СВЧ излучения можно объяснить расширением разряда вдоль подложки при увеличении мощности и практически неизменном удельном энергокладе в плазму. Возрастание относительного содержания аргона в газовой смеси приводило, с одной стороны, к увеличению частоты ионизации, что влекло за собой рост концентрации N_e и температуры газа. Однако, с другой стороны, данный эффект компенсировался увеличением размеров СВЧ разряда вдоль подложки, что в итоге даже немного уменьшало электронную концентрацию и температуру газа.

Для исследуемого СВЧ разряда сильно увеличивалась концентрация электронов с ростом давления газа, тогда как температура газа при этом изменялась слабо. Данный эффект можно объяснить уменьшением размеров плазмы и ростом пиковой электронной концентрации в окрестности каждой пучности поля. В результате локально возростал удельный энергоклад в плазму, что увеличивало коэффициент поглощения энергии с ростом давления газа. Поглощаемая энергия перераспределялась по всему объёму разряда, который сохранял свой размер во всём диапазоне рабочих давлений. Таким образом, с ростом давления постепенно возростала температура газа.

Как было отмечено выше, измеренная усреднённая концентрация электронов не сильно отличалась от пиковой концентрации. Измеренная концентрация электронов в СВЧ разряде была порядка критической концентрации для используемой частоты микроволнового излучения, и наблюдалась сильная зависимость концентрации N_e от давления газа (рис. 7б). Достижение таких высоких концентраций могло быть связано со стратификацией разряда (рис. 2а). В случае развития в плазме разряда плазменно-резонансной неустойчивости электронная концентрация в каждом слое может превышать критическую, что и наблюдалось при более высоких давлениях.

Достижимые параметры плазмы в разряде позволяют получать высокие концентрации радикалов, а форма разряда в виде тонкого плазменного слоя обеспечивает мощный поток этих частиц на поверхность подложки с большой площадью. Это представляет интерес для применения такого разряда для осаждения алмазных плёнок из газовой фазы [6, 7]. Результаты моделирования разряда в пересекающихся пучках над подложкой показали, что, несмотря на стратификацию плазмы в разряде, концентрация атомарного водорода над подложкой варьируется в пространстве слабо. Поэтому, например, выращиваемые в таком разряде алмазные плёнки будут характеризоваться высокой однородностью при диаметре подложки до 100 мм [27].

4. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Результаты проведённых экспериментов показали, что в двух пересекающихся волновых пучках миллиметрового диапазона длин волн можно контролируемым образом создавать и поддерживать устойчивый непрерывный СВЧ разряд заданной формы и размера. Для такого СВЧ разряда характерны высокие концентрация электронов (порядка 10^{13} см^{-3}) и поглощаемая в плазме мощность СВЧ излучения. Температура газа в разряде варьировалась в диапазоне $3\,000 \div 3\,500 \text{ К}$

и слабо зависела от мощности падающего излучения и давления газа. В то же время концентрация электронов в плазме сильно зависела от давления и состава газовой смеси.

Для СВЧ разряда в двух пересекающихся волновых пучках с ТЕ-поляризацией наблюдалось расслоение плазмы в направлении напряжённости электрического поля. Оно присутствовало во всём рабочем диапазоне давлений газа. Можно предположить, что такое расслоение плазмы в направлении напряжённости электрического поля возникало вследствие плазменно-резонансной неустойчивости. Такая неустойчивость играет основную роль в газоразрядной плазме в диапазоне давлений, где частота столкновений электронов с нейтралами порядка частоты волны. Вследствие нагрева газа данное условие в наших экспериментах реализовывалось во всём диапазоне давлений газа.

Авторы работы благодарят А. В. Кострова, обратившего их внимание на дополнительные механизмы уширения линии излучения атомарного водорода в СВЧ плазме.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Vikharev A. L., Ivanov O. A., Litvak A. G. // IEEE Trans. Plasma Sci. 1996. V. 24, No. 2. P. 460.
2. Вихарев А. Л., Гильденбург В. Б., Ким А. В. и др. // Высоочастотный разряд в волновых полях / Под ред. А. Г. Литвака. Горький: ИПФ АН СССР, 1988. С. 41.
3. Vikharev A. L. // J. Tech. Phys. 2000. V. 41, No. 1. P. 485.
4. Гуревич А. В., Литвак А. Г., Вихарев А. Л. и др. // УФН. 2000. Т. 170, № 11. С. 1181.
5. Vykov Yu., Ereemeev A., Glyavin M., et al. // IEEE Trans. Plasma Sci. 2004. V. 32. P. 67.
6. Vikharev A. L. // Proc. 6th Intern. Workshop "Microwave Discharges. Fundamentals and Applications", Zvenigorod, 11–15 September 2006. Moscow: Yanus-K, 2006. P. 29.
7. Vikharev A. L., Gorbachev A. M., Kozlov A. V., et al. // Diamond Relat. Mater. 2006. V. 15. P. 502.
8. Denisov G. G., Kuzikov S. V. // Proc. Intern. Workshop "Strong Microwaves in Plasmas". Nizhny Novgorod: Inst. Appl. Phys., 2000. P. 960.
9. Гильденбург В. Б., Ким А. В. // Журн. exper. теорет. физ. 1978. Т. 74. С. 141.
10. Baulh D. L., Cobos C. J., Cox R. A., et al. // Combustion and Flame. 1994. V. 98. P. 59.
11. Rousean A., Granier A., Gousset G., Leprince P. // J. Phys. D. 1994. V. 27. P. 1412.
12. Варграфтик Н. В. Справочник по теплофизическим свойствам газов и жидкостей. М. 1972.
13. Vikharev A. L., Gorbachev A. M., Radishev D. B., Kozlov A. V. // 28th Int. Conf. Phenomena Ion. Gases, July 15–20, 2007, Prague, Czech Republic, 2007.
14. Lombardi G., Benedic F., Mohasseb F., et al. // Plasma Sources Sci. Technol. 2004. V. 13. P. 375.
15. Prasad C. V. V., Bernath P. F. // Astrophys. J. 1994. V. 426. P. 812.
16. Pellerin S., Musiol K., Motret O., et al. // J. Phys. D. 1996. V. 29. P. 2850.
17. Вихарев А. Л., Горбачёв А. М., Колданов В. А., Радищев Д. Б. // Физика плазмы. 2005. Т. 31, № 4. С. 376.
18. Torres J., Jonkers J., van de Sande M. J., et al. // J. Phys. D. 2003. V. 36. P. L55.
19. Griem H. R. Spectral line broadening by plasmas. New York: Academic Press, 1974.
20. Карякин Н. И., Быстров К. Н., Киреев П. С. Краткий справочник по физике. М.: Высшая школа, 1963.
21. Gicquel A., Chenevier M., Hassouni Kh., et al. // J. Appl. Phys. 1998. V. 83, No. 12. P. 7504.
22. Gigosos M. A., Gonzalez M. A., Cardenoso V. // Spectrochimica Acta. B. 2003. V. 58. P. 1489.
23. Blochinzev D. I. // Physikalische Zeitschrift der Sowjetunion. 1933. V. 4. P. 501.
24. Мицук В. Е., Козьминых М. Д., Талалаева И. В. // Изв. АН СССР. Сер. «Физическая». 1959. Т. 23, № 8. С. 1031.

25. Делоне Н. Б., Крайнов В. П. // УФН. 1999. Т. 169, № 7. С. 753.
26. Vikharev A. L., Gorbachev A. M., Kozlov A. V., et al. // *Diamond Relat. Mater.* 2008. V. 17. P. 1055.
27. Vikharev A. L., Gorbachev A. M., Radishev D. B., et al. // Proc. of 8th Intern. Workshop "Microwave Discharges: Fundamentals and Applications", Zvenigorod, 10–14 September 2012. Moscow: Yanus-K, 2012. P. 133.

Поступила в редакцию 9 апреля 2014 г.; принята в печать 8 октября 2014 г.

STUDY OF A CONTINUOUS MICROWAVE DISCHARGE IN TWO CROSSING WAVE BEAMS OF THE MILLIMETER WAVELENGTH BAND

A. L. Vikharev, A. M. Gorbachev, D. B. Radishev, V. V. Chernov, and A. V. Kozlov

We present the results of studying a microwave discharge produced by continuous-wave gyrotron radiation with a frequency of 30 GHz in a mixture of argon and hydrogen with an admixture of methane in the region of crossing of two wave beams. The discharge wave maintained over a substrate and had the form of a thin plasma layer. The gas temperature and electron density in the plasma were measured by the methods of optical spectroscopy of radiation. Features of determining Stark widening of spectral lines of atomic hydrogen at a relatively low (of about 10^{13} cm^{-3}) electron density are discussed. Dependencies of the electron density and gas temperature on the pressure and gas composition, as well as the power of the incident microwave radiation are presented. The prospects of using the discharge under consideration for plasmochemical deposition of diamond films from the gaseous phase are considered.