



УДК 533.9.082.5; 543.423.1

Д. К. Кострин, М. С. Зятькова, А. Н. Рамазанов
Санкт-Петербургский государственный электротехнический
университет «ЛЭТИ» им. В. И. Ульянова (Ленина)

А. А. Лисенков
Институт проблем машиноведения Российской академии наук (ИПМаш РАН)

Определение параметров газоразрядной плазмы с использованием синтезированных спектров излучения

Рассмотрено построение спектров излучения газоразрядной плазмы, синтезированных с использованием данных об электронных переходах в веществах в предположении локального термодинамического равновесия. Показана возможность использования данных спектров для упрощения анализа состава плазмы в процессе нанесения покрытий. Описаны возможности использования синтезированных спектров для определения параметров газоразрядной плазмы.

Газоразрядная плазма, спектр излучения, электронный переход, электронная температура

Методы оптической спектроскопии широко применяются для контроля ионно-плазменных процессов, в частности при нанесении пленок и покрытий из распыленного газовой разрядом материала [1]–[5]. Атомы и молекулы осаждаемого вещества за счет соударения с электронами частично переходят в возбужденное состояние, при этом обратный переход в основное состояние сопровождается испусканием оптического излучения.

Число всех электронных переходов и, следовательно, число линий в спектре излучения вещества определяется числом и размещением внешних электронов. Спектры атомов с малым числом валентных электронов (например, щелочные металлы) имеют относительно мало линий. Атомы со сложно построенными внешними оболочками, особенно элементы побочных подгрупп Периодической системы, имеют спектры излучения с очень большим числом линий.

Линии, обусловленные переходом электрона на основной уровень, принято называть резонансными. Особое аналитическое значение имеют все резонансные линии, соответствующие переходам с первого возбужденного уровня. Для возбуждения резонансных линий в спектрах щелочных металлов необходима незначительная энергия, в то время как в случае неметаллов эта энергия очень высока.

Ионы обладают собственными спектрами излучения, которые существенно отличаются от спектров нейтральных атомов данного элемента. Вследствие этого в спектре появляются новые ионные линии, а интенсивность атомных линий снижается. Таким образом, с увеличением степени ионизации интенсивность линий нейтральных атомов будет понижаться за счет уменьшения их числа.

В случае диагностики плазмы методы оптической спектроскопии позволяют получить информацию о таких ее свойствах, как химический состав, плотность, потенциал, электронная температура и др. [6]–[8].

Свойства и параметры газоразрядной плазмы. Возможности применения методов оптической спектроскопии зависят от параметров исследуемой системы. Состояние однородной плазмы, находящейся в замкнутом объеме с изотермическими стенками, может быть описано с использованием ряда макроскопических параметров (температура, давление и концентрация компонентов) без детального рассмотрения микроскопических процессов [9]. В таком случае плазма находится в термодинамическом равновесии. При достижении равновесия для описания состояния вещества и свойств излучения в объеме могут использоваться законы статистической механики: законы Максвелла, Больцмана и Саха

описывают функцию распределения частиц по энергиям, процессы возбуждения и ионизации соответственно; закон Планка описывает спектральное распределение излучения.

Стоит отметить, что полное термодинамическое равновесие наблюдается практически только в звездных телах, где большие объемы вещества находятся при больших температурах. В свою очередь, в лабораторных условиях принято говорить о локальном термодинамическом равновесии. В случае малого объема плазмы значительная часть излучения покидает объем без поглощения (оптически тонкая плазма), спектральная плотность излучения не подчиняется закону Планка, а процессы возбуждения не могут быть в полной мере описаны распределением Больцмана. Однако в случае высокой электронной плотности, когда именно столкновения с электронами в основном определяют процессы возбуждения, релаксации и рекомбинации, предположения локального термодинамического равновесия могут использоваться.

В таком случае для описания спектрального распределения интенсивности (I) может применяться распределение Больцмана [9]:

$$I(\lambda_{mn}) = \frac{1}{4\pi} \frac{hc}{\lambda_{mn}} A_{mn} g_m \frac{N_i}{Z(T_e)} \exp\left(-\frac{E_m}{kT_e}\right), \quad (1)$$

где $h = 6.626 \cdot 10^{-34}$ Дж·с – постоянная Планка; $c = 2.998 \cdot 10^8$ м/с – скорость света; λ_{mn} – длина волны излучения при переходе с верхнего уровня m на нижний n ; A_{mn} – вероятность перехода; g_m – статистический вес верхнего уровня; N_i – общая концентрация частиц типа i ; $Z(T_e)$ – статистическая сумма; $k = 1.38 \cdot 10^{-23}$ Дж/К – постоянная Больцмана; T_e – электронная температура; E_m – энергия верхнего уровня. Статистическая сумма, содержащая информацию о статистических свойствах системы в состоянии термодинамического равновесия, определяется следующим образом:

$$Z(T_e) = \sum_m g_m \exp\left(-\frac{E_m}{kT_e}\right).$$

Необходимо учитывать, что реальные спектральные линии уширены вследствие влияния различных факторов. Профиль уширения может быть описан по Лоренцу, Гауссу или Войту [10]. Тип уширения зависит от факторов, приводящих к нему. Реальное уширение спектральной линии определяется суммарным влиянием различных факторов.

Одним из методов определения электронной температуры плазмы является вычисление по соотношению экспериментальных интенсивностей двух спектральных линий [11]:

$$T_e = \frac{E_{m2} - E_{m1}}{k \ln \left(\frac{I(\lambda_{mn1}) A_{mn2} g_{m2} \lambda_{mn1}}{I(\lambda_{mn2}) A_{mn1} g_{m1} \lambda_{mn2}} \right)}, \quad (2)$$

где E_{m1} , λ_{mn1} , A_{mn1} , g_{m1} – параметры, соответствующие первой из рассматриваемых спектральных линий; E_{m2} , λ_{mn2} , A_{mn2} , g_{m2} – второй. Вместо одной из линий может, в случае ее наличия, рассматриваться сплошная составляющая спектра излучения. Стоит отметить, что полученные по (2) результаты зачастую не являются точными, поэтому распространены вычисления по большому числу пар линий с последующей статистической обработкой.

Результаты и их обсуждение. Рассмотрим синтезирование искусственных спектров излучения плазмы для визуального определения ее параметров. Для построения спектров в работе было использовано выражение (1) в предположении локального термодинамического равновесия. В дальнейшем полученные данные были умножены на функцию, моделирующую реальное уширение спектральных линий.

Прежде чем перейти к рассмотрению сложных спектров излучения плазмы в процессе нанесения покрытий, определим наиболее подходящую для дальнейшего использования методику. Наилучшим источником излучения для предварительного испытания методов моделирования спектров излучения является ртутная лампа низкого давления, спектр которой содержит интенсивные, отстоящие друг от друга на большое расстояние линии атомарной ртути.

Реальные спектры излучения плазмы, с которыми сравнивались все синтезированные в работе спектры, были получены с использованием универсального оптического спектрометра ISM3600, разработанного в СПбГЭТУ «ЛЭТИ» [12], [13]. Для управления прибором и анализа спектров использовалось программное обеспечение Aspect2010. При этом для получения более достоверных результатов все экспериментальные спектры были обработаны с применением цифровых фильтров и усреднены по нескольким измерениям. Перед проведением экспериментов прибор был откалиброван с использованием спектра эталонного источника для коррекции его спектральной характеристики [14].

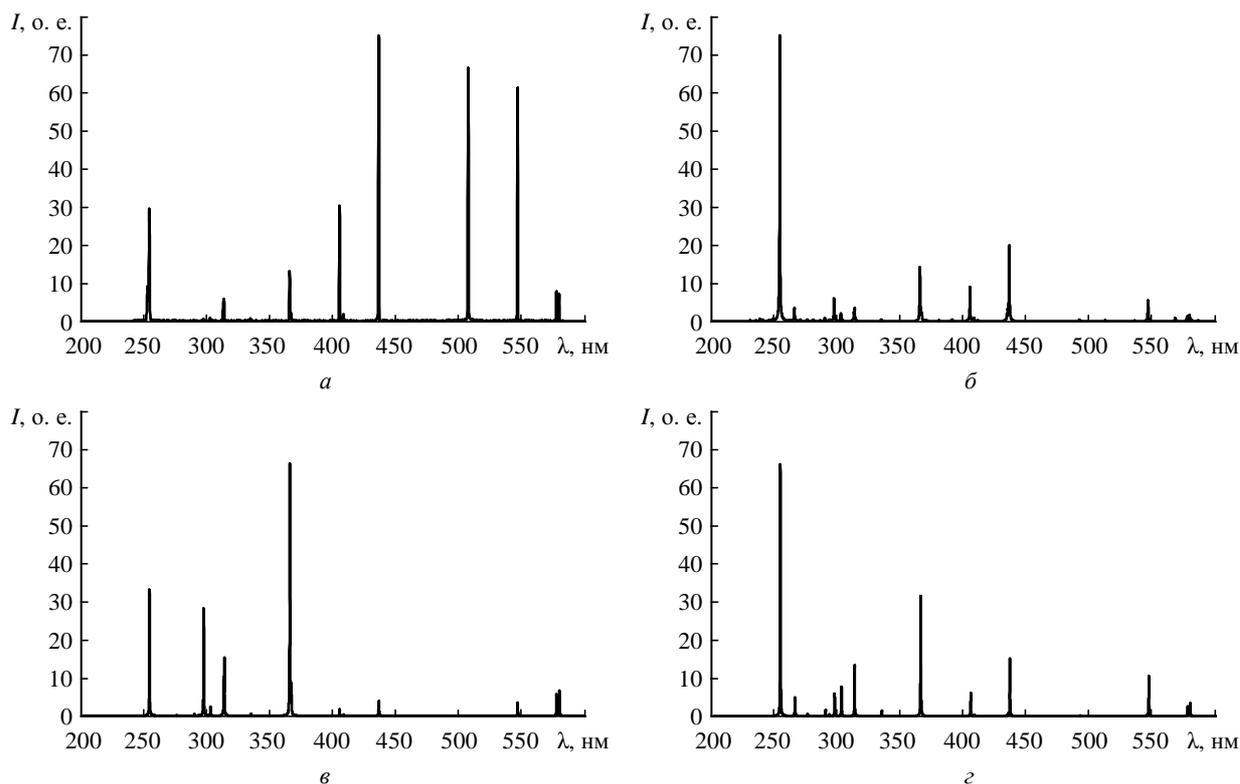


Рис. 1

Для синтезирования спектров излучения могут использоваться различные данные о возможных электронных переходах в атомах. Рассмотрим три варианта: данные из таблиц спектральных линий, а также из баз Kurucz [15] и NIST [16]. Экспериментальные спектры построены по точкам, соответствующим пикселям фотоприемника спектрометра, все синтезированные спектры излучения получены с использованием программного пакета Mathcad.

На рис. 1 приведены фрагменты спектров излучения плазмы ртути: *a* – ртутной лампы низкого давления; *b* – построенный с использованием таблицы спектральных линий; *c* – синтезированный по данным базы Kurucz; *d* – синтезированный по данным базы NIST.

Экспериментальный спектр излучения построен по 3648 точкам, соответствующим пикселям фотоприемника с переносом зарядов, используемого в оптической схеме спектрометра. В таблицах спектральных линий для ртути в данном диапазоне длин волн содержится 139 линий. В базах данных Kurucz и NIST – 24 и 28 разрешенных электронных переходов, вызывающих появление спектральных линий, соответственно.

Очевидно, что синтезированные спектры не в полной мере совпадают с экспериментальным спектром. Из трех синтезированных спектров для даль-

нейшей работы авторами был выбран спектр, полученный с использованием данных из базы NIST (рис. 1, *d*) как наиболее правдиво отражающий картину спектрального распределения излучения.

Приведенные на рис. 1 синтезированные спектры излучения, построенные по базам данных, получены для электронной температуры 11 600 К или 1 эВ. Приведем синтезированные спектры излучения атомарной ртути при различной электронной температуре (T_e) по данным базы NIST (рис. 2): *a* – 1 эВ; *b* – 2 эВ; *c* – 3 эВ; *d* – 4 эВ.

Очевидно, что синтезированные спектры с электронной температурой 3 и 4 эВ ближе к экспериментальному спектру, чем рассмотренный ранее спектр для температуры 1 эВ. Стоит отметить, что по литературным данным электронная температура для ртутной лампы низкого давления составляет 1...2 эВ. В данном случае либо использованный несерийный образец источника излучения имеет повышенную по сравнению со стандартными источниками электронную температуру, либо синтезированные спектры не в полной мере соответствуют заявленной электронной температуре.

При этом очевидным является следующий факт: подбирая параметры в (1) для синтезирования спектра, можно подобрать его форму, наиболее совпадающую с реальным спектром, и таким образом примерно оценить параметры газоразрядной плазмы.

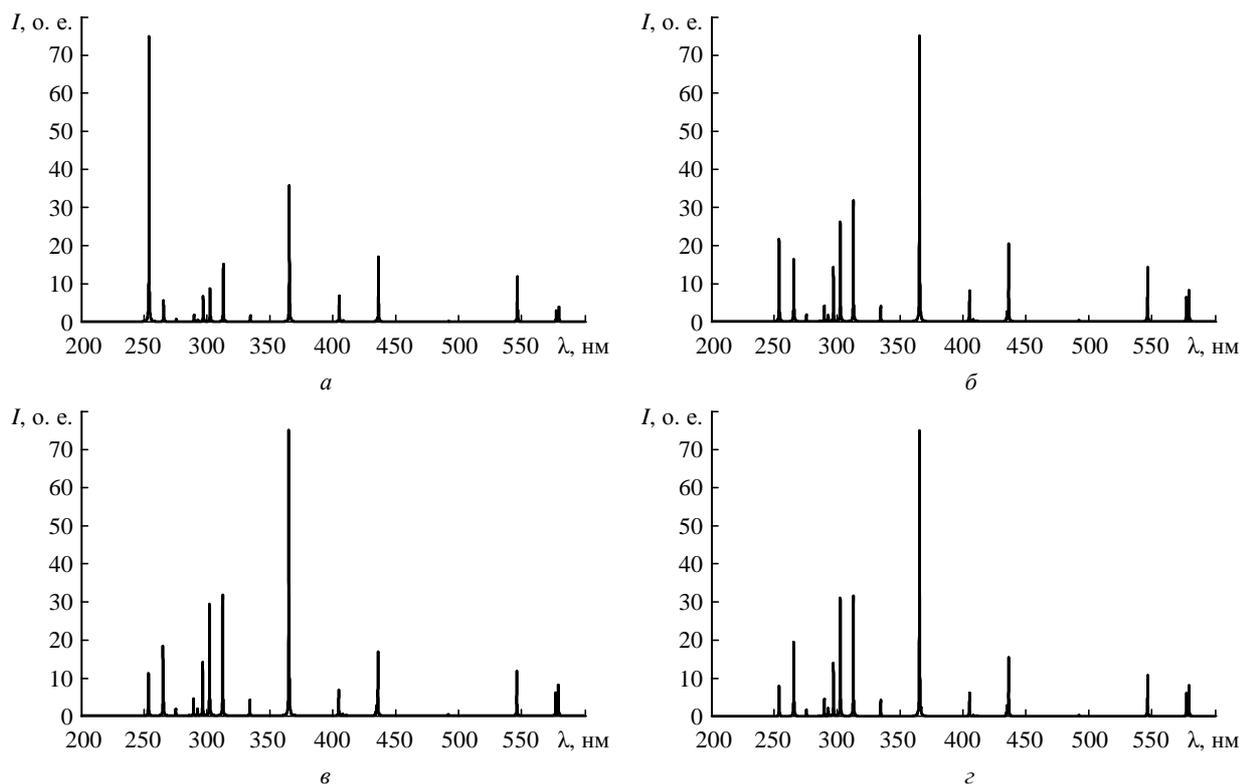


Рис. 2

Оценка примерной электронной температуры по экспериментальному спектру с использованием (2) дала ненадежные результаты: для некоторых пар линий результаты достаточно близки к ожидаемым, при этом для ряда пар линий результаты отличаются от ожидаемых на 2–3 порядка.

Перейдем к рассмотрению спектра излучения плазмы в процессе нанесения титанового покрытия с использованием вакуумно-дугового источника плазмы [17], [18]. При нанесении титанового покрытия в спектре излучения плазмы обнаруживаются спектральные линии, соответствующие как атомарному титану, так и его ионам [2]. Степень ионизации плазмы в вакуумно-дуговом разряде достаточно высока, в плазменном потоке титановой плазмы имеются как одно-, так и многозарядные ионы.

На рис. 3 приведен реальный спектр излучения плазмы, а также синтезированные с использованием данных из базы NIST спектры излучения атомов и ионов титана для электронной температуры 1 эВ, считающейся близкой к реальному значению для вакуумно-дугового источника плазмы: *а* – спектр излучения плазмы вакуумно-дугового разряда при распылении титанового катода; *б* – синтезированный спектр излучения атомарного титана; *в* – синтезированный спектр излучения двухзарядного иона титана; *г* – синтези-

рованный спектр суммарного излучения одно- и трехзарядных ионов титана.

На основании данных, представленных на рис. 3, можно отметить, что спектр излучения атомарного титана близок к общему экспериментальному спектру излучения титановой плазмы. Спектральные линии, соответствующие ионам титана с разным зарядом, с учетом невысокого спектрального разрешения используемого спектрометра накладываются на линии, соответствующие атомарному титану.

В базе NIST в рассмотренном диапазоне длин волн атомарному титану соответствуют 360 линий, Ti^+ – 205 линий, Ti^{2+} – 121 линия и Ti^{3+} – всего 8 линий. Спектральные линии четырехзарядного иона титана лежат в ультрафиолетовой области и не попадают в рассмотренный диапазон.

Проведенные исследования показывают, что использование синтезированных спектров для определения состава и параметров плазмы имеет ограниченное применение – определение параметров принципиально возможно, но сложно и малоцелесообразно. Плазма в процессе нанесения покрытий является слишком сложной системой – в то время как для ртутной лампы такие методики могут эффективно использоваться, для вакуумно-дугового разряда оценка слишком сложна, даже по одному веществу, без учета других химических элементов, которые также могут участвовать в про-

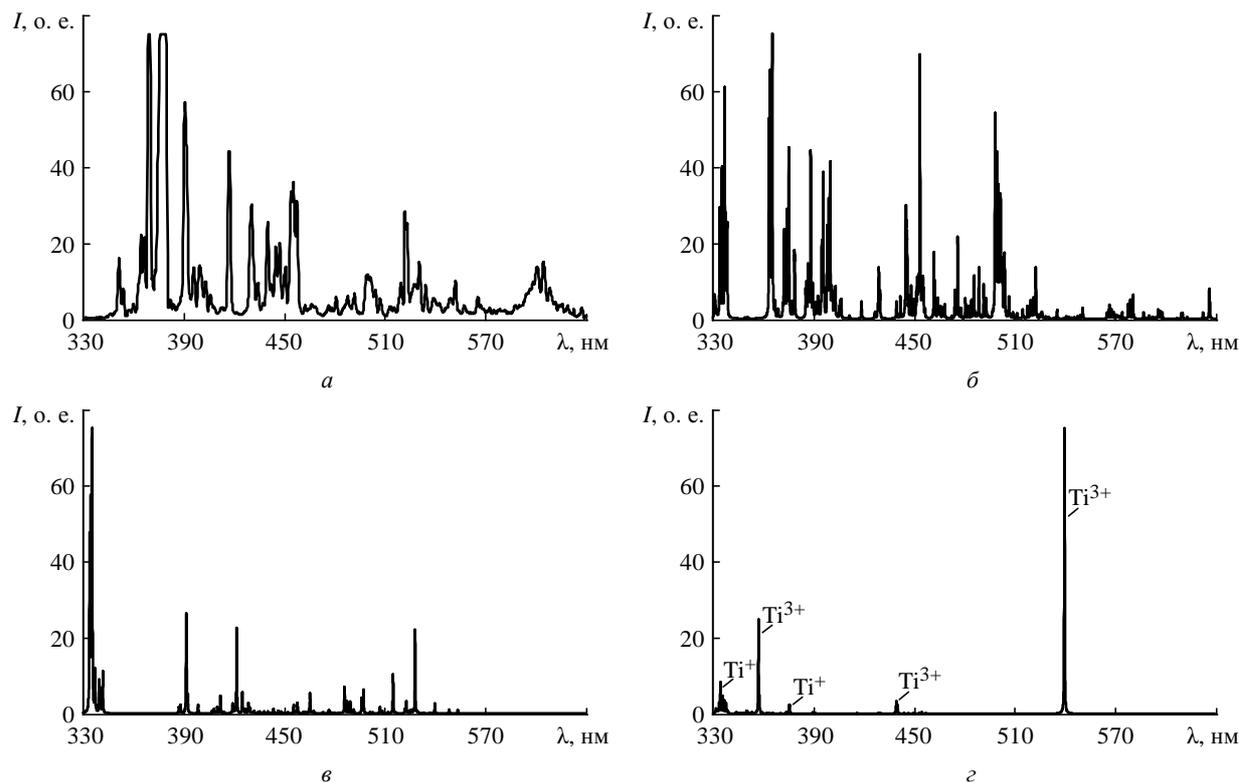


Рис. 3

цессе. Однако можно отметить, что при несложных операциях построения, синтезированные спектры могут значительно облегчить идентификацию элементов, входящих в состав плазмы.

Также стоит обратить внимание на тот факт, что данные по спектральным линиям из баз Kurucz и NIST соответствуют астрофизическим измерениям и в первую очередь предназначены для оценки спектров излучения звезд. Таблицы спек-

тральных линий, в свою очередь, содержат информацию для некоторого идеального случая. В реальной системе имеется сложное взаимодействие частиц, образующих плазму, таким образом, синтезированные спектры не могут в полной мере отражать реальное распределение излучения по длинам волн.

Исследование выполнено при финансовой поддержке Фонда содействия инновациям.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Devia D. M., Rodriguez-Restrepo L. V., Restrepo-Parra E. Methods Employed in Optical Emission Spectroscopy Analysis: a Review // *Ingenieria y Ciencia*. 2015. Vol. 11, № 21. P. 239–267.
2. Быстров Ю. А., Кострин Д. К., Лисенков А. А. Спектрометрический анализ состава плазменного потока вакуумно-дугового разряда // *Вакуумная техника и технология*. 2014. Т. 23, № 1. С. 164–166.
3. Особенности анализа состава плазмы с помощью малогабаритного оптического спектрометра / А. А. Ухов, Д. К. Кострин, В. А. Герасимов, Л. М. Селиванов // *Изв. СПбГЭТУ «ЛЭТИ»*. 2015. № 3. С. 7–10.
4. Кострин Д. К. Оптический контроль состава газовой смеси в процессе реактивного магнетронного распыления // *Контроль. Диагностика*. 2015. № 5. С. 47–50.
5. Кострин Д. К. Оборудование и методы спектрометрического контроля изделий и процессов электроники. СПб.: Изд-во СПбГЭТУ «ЛЭТИ», 2015. 160 с.
6. Use of compact spectrometer for plasma emission qualitative analysis / A. A. Uhov, V. A. Gerasimov, D. K. Kostrin, L. M. Selivanov // *J. of Physics: Conf. Series*. 2014. Vol. 567. P. 012039.
7. Kostrin D. K., Uhov A. A., Lisenkov A. A. Optical spectrometry in the diagnosis of ion-plasma processes: Control of the coating deposition process and thickness // *Vakuum in Forschung und Praxis*. 2016. Vol. 28, № 3. P. 34–37.
8. Kostrin D. K., Lisenkov A. A., Uhov A. A. Spectrometric control of coatings deposition process // *J. of Physics: Conf. Series*. 2016. Vol. 735. P. 012055.
9. The calculation of monatomic spectral lines intensities and composition in plasma out of thermal equilibrium; evaluation of thermal disequilibrium in ICP torches / P. Andre, J. Ondet, R. Pellet, A. Lefort // *J. of Physics D: Applied Physics*. 1997. Vol. 30. P. 2043–2055.

10. Кострин Д. К. Автоматический поиск положения спектральных линий при анализе спектров излучения плазмы // Изв. СПбГЭТУ «ЛЭТИ». 2014. № 6. С. 11–15.

11. Plasma spectroscopy analysis technique based on optimization algorithms and spectral synthesis for arc-welding quality assurance / J. Mirapeix, A. Cobo, D. A. Gonzalez, J. M. Lopez-Higuera // Optics Express. 2006. Vol. 15, № 4. P. 1884–1897.

12. Кострин Д. К., Ухов А. А. Аппаратно-программный спектрометрический комплекс для исследования параметров светоизлучающих диодов // Биотехносфера. 2013. № 3. С. 21–25.

13. Кострин Д. К., Ухов А. А. Повышение метрологических характеристик спектрометрического оборудования при диагностике ионно-плазменных процессов // Вакуумная техника и технология. 2014. Т. 24, № 1. С. 34–38.

14. Коррекция спектральной характеристики оптического спектрометра при исследовании источников инфракрасного излучения / Д. К. Кострин,

А. А. Ухов, В. А. Герасимов, Л. М. Селиванов // Изв. СПбГЭТУ «ЛЭТИ». 2014. № 2. С. 3–5.

15. Atomic spectral line database built from atomic data files from R. L. Kurucz CD-ROM / P. L. Smith, C. Heise, J. R. Esmond, R. L. Kurucz. URL: <http://www.pmp.uni-hannover.de/cgi-bin/ssi/test/kurucz/sekur.html>.

16. Kramida A., Ralchenko Yu., Reader J. NIST Atomic Spectra Database. URL: http://physics.nist.gov/PhysRefData/ASD/lines_form.html.

17. Technological Capabilities of Vacuum Arc Plasma Sources: Plasmochemical Synthesis of Nitride Compounds / Yu. A. Bystrov, N. Z. Vetrov, A. A. Lisenkov, D. K. Kostrin // Vakuuum in Forschung und Praxis. 2014. Vol. 26, № 5. P. 19–23.

18. Cathode Spots of Vacuum Arc Discharges: Motion Control on the Working Surface / Yu. A. Bystrov, D. K. Kostrin, A. A. Lisenkov, N. Z. Vetrov // Vakuuum in Forschung und Praxis. 2015. Vol. 27, № 2. P. 22–25.

D. K. Kostrin, M. S. Ziatkova, A. N. Ramazanov
Saint Petersburg Electrotechnical University «LETI»

A. A. Lisenkov

Institute of Problems of Mechanical Engineering of the Russian Academy of Sciences (IPME RAS)

DETERMINATION OF GAS DISCHARGE PLASMA PARAMETERS USING SYNTHESIZED RADIATION SPECTRA

Formation of emission spectra of gas discharge plasma, synthesized using data on electronic transitions in substances under the assumption of local thermodynamic equilibrium is shown. Possibility of using these spectra to simplify the analysis of the plasma composition during the coating deposition process is demonstrated. Prospects of using synthesized spectra to determine the parameters of gas discharge plasma are discussed.

Gas discharge plasma, emission spectrum, electronic transition, electronic temperature

УДК 533.9.082.5; 543.423.1

А. С. Киселев, Е. А. Смирнов

Санкт-Петербургский государственный электротехнический университет «ЛЭТИ» им. В. И. Ульянова (Ленина)

Моделирование динамического сопротивления тлеющего разряда с протяженным положительным столбом

Проанализировано выражение для динамического сопротивления тлеющего разряда, протекающего в протяженных трубках. Выражение описывает физические процессы, протекающие в положительном столбе тлеющего разряда. Рассчитаны частотные зависимости активной и реактивной составляющих, а также модуля динамического сопротивления для разрядных условий, соответствующих He-Ne- и CO₂-лазерам. На основе результатов моделирования разработана схема устройства для экспериментального исследования динамического сопротивления разряда.

Положительный столб, электронная температура, градиент потенциала, динамическое сопротивление плазмы, лазер тлеющего разряда

Газоразрядные приборы находят широкое применение в различных областях науки и техники. Большая распространенность таких приборов обусловлена большим разнообразием конструк-

тивных решений, связанных, в том числе, с видом протекающего в приборе разряда. Среди широчайшего перечня таких приборов особое место занимают приборы с протяженным положитель-