

# 电子回旋共振氩等离子体中亚稳态粒子数密度 及电子温度的测量\*

陈卓<sup>1)2)</sup> 何威<sup>1)</sup> 蒲以康<sup>1)†</sup>

<sup>1)</sup>清华大学工程物理系, 北京 100084)

<sup>2)</sup>北京理工大学物理系, 北京 100081)

(2004 年 6 月 28 日收到, 2004 年 8 月 30 日收到修改稿)

测量了电子回旋共振 (ECR) 氩等离子体中 Ar 的  $1s_5$  亚稳态粒子数密度, 在气压为 0.2—0.8 Pa、功率为 500—700 W 的范围内, 利用吸收光谱法测量了 Ar 原子 811.5 nm 谱线的吸收强度, 得到  $1s_5$  亚稳态粒子数密度为  $1 \times 10^{15}$ — $4 \times 10^{15} \text{ m}^{-3}$ . 本文综合考虑基态和  $1s_5$  亚稳态粒子的激发对 Ar 发射谱线强度的贡献后, 用两条发射谱线强度之比得到电子温度. 结果表明, 计入了  $1s_5$  亚稳态激发的贡献后, 所得到的电子温度与只考虑基态的贡献得到的电子温度相比存在较大的差别.

关键词: 光谱法, 亚稳态粒子数密度, 电子温度, ECR 等离子体源

PACC: 5270N, 5270K, 5220F

## 1. 引言

随着等离子体在材料处理等方面的应用日趋广泛, 亚稳态粒子数密度越来越成为等离子体中不可忽视的一个参数. 虽然亚稳态粒子数密度远小于基态粒子数密度, 但是由于它存在较大的电子碰撞激发截面及较小的激发阈值能量, 因此对等离子体中的电离、激发过程有着重要的贡献, 影响着等离子体的状态. 电子温度是衡量和控制等离子体状态的重要参数. 测量电子温度有多种方法, 例如探针法、光谱法等<sup>[1]</sup>. 其中发射光谱法是利用测量发射谱线的强度来计算电子温度, 这种方法具有不干扰等离子体状态的优点. 当只考虑基态和亚稳态粒子数对于上能级粒子数的贡献时, 发射谱线的强度可以表示为<sup>[2]</sup>

$$I_{ij} = \alpha_{ij} b_{ij} n_i n_e \left[ n_m \sigma_{m \rightarrow i} + n_g \sigma_{g \rightarrow i} \right] \cdot (h\nu_{ij}) \cdot V, \quad (1)$$

式中  $\alpha_{ij}$  为光谱仪对频率为  $\nu_{ij}$  的谱线的响应系数,  $b_{ij}$  为从能级  $i$  跃迁到能级  $j$  的分支比,  $V$  为等离子体的体积,  $n_e$ ,  $n_m$ ,  $n_g$  分别为电子密度、亚稳态粒子数

密度和基态粒子数密度,  $\sigma_{m(g) \rightarrow i}$  为激发速率常数, 它是电子温度的函数. 因此由 (1) 式可以看出发射谱线的强度是电子温度的函数. 计算中需要较精确的包含级联过程的激发截面数据. 从文献 [3] 中得到 Ar 基态粒子的激发截面, 文献 [4] 得到 Ar 亚稳态粒子的激发截面, 这些数据均已包含了跃迁的级联过程. 在以前测量电子温度的研究中, Pospieszczyk 等人<sup>[5]</sup> 仅考虑了基态粒子激发对于发射谱线强度的影响, 忽略了亚稳态的贡献; Malyshev 等人<sup>[2]</sup> 建立了稳态模型, 用理论的方法计算了亚稳态粒子数密度与基态粒子数密度的比值, 并指出亚稳态的激发对发射谱线强度有很大贡献, 因此他们用发射光谱法计算电子温度时, 考虑了亚稳态的影响. 但是这种理论推导亚稳态粒子数密度的方法<sup>[2]</sup> 比较粗略, 其中稳态模型的假设并不一定符合等离子体的实际情况. 扩散系数等参数的估算也存在很多的近似. 基于以上原因, 本文主要进行了如下工作: 1) 在气压为 0.2—0.8 Pa、功率为 500—700 W 的范围内, 测量了 ECR 氩等离子体放电时 Ar 的  $1s_5$  亚稳态粒子数密度; 2) 利用得到的亚稳态粒子数密度, 综合基态和亚稳态粒子的激发对发射谱线强度的贡献, 计算了电子温度; 3) 将得到的电子温度与不计入亚稳态激

\* 国家自然科学基金重点项目 (批准号: 30335040) 资助的课题.

† E-mail: puyikang@tsinghua.edu.cn

发的情况进行比较,发现亚稳态粒子数密度对于电子温度的测量有很大的影响.

## 2. 实验原理和方法

### 2.1. 亚稳态粒子数密度的测量

用小型电感耦合氩等离子体作为光源,ECR 中 Ar 谱线的吸收比例可表示为

$$A_L = 1 - \frac{I_t}{I_0} \quad (2)$$

式中  $I_0$ ,  $I_t$  分别为光源的初始光强和经 ECR 后的透射光强. 谱线的吸收比例与亚稳态粒子数密度的关系为<sup>[6]</sup>

$$A_L = \sum_{n=1}^{\infty} \frac{(-1)^{n+1}}{n!} \frac{(k_0 L)^n}{(1 + n\alpha^2)^2}, \quad (3)$$

$$k_0 = \frac{2}{\Delta\nu_D} \sqrt{\frac{\ln 2}{\pi}} \frac{\lambda_0^2 g_2}{8\pi g_1} A_{2 \rightarrow 1} \cdot N,$$

式中  $N$  为所求亚稳态粒子数密度,  $k_0 L$  为光学厚度,  $L$  为吸收长度,  $\lambda_0$  为待测谱线的波长,  $g_1$ ,  $g_2$  分别为 1, 2 两能级的统计权重,  $A_{2 \rightarrow 1}$  为从能级 2 跃迁到能级 1 的爱因斯坦系数. 在本实验条件下, 多普勒展宽为主要的展宽机理<sup>[6,7]</sup>, 因而系数  $\alpha = \Delta\nu_D' / \Delta\nu_D$ ,  $\Delta\nu_D$ ,  $\Delta\nu_D'$ ,  $\Delta\nu_D$  分别为光源和吸收气体的多普勒展宽宽度<sup>[6]</sup>

$$\Delta\nu_{(D)'} = \frac{2\sqrt{2R\ln 2}}{c} \nu_0 \sqrt{\frac{T_g}{M}}, \quad (4)$$

式中  $\nu_0$  为待测谱线的频率,  $T_g$  为气体温度,  $M$  为分子量. 由于当气压等宏观条件变化时, 气体温度会随之变化. 因此对于光源和 ECR 的气体温度, 我们没有像以往的文獻 [7] 那样将其估算为 300 K, 而是将 Ar 气中混入少量  $N_2$  气, 测量  $N_2$  分子的峰值在 399.8 nm 处的振动谱线, 得出  $N_2$  分子的转动温度, 将其近似为气体温度<sup>[8]</sup>. Ar 原子的第一激发态 ( $3p^5 4s$ ) 分裂为四个能级 (用原子态帕邢表示法表示为  $1s_2$ ,  $1s_3$ ,  $1s_4$ ,  $1s_5$ ) 其中  $1s_3$  和  $1s_5$  是 Ar 的亚稳态. 第二激发态 ( $3p^5 4p$ ) 分裂为十个能级 (从  $2p_1$  到  $2p_{10}$ ). 实验中测量了光源中 Ar 的 811.5 nm ( $2p_9 - 1s_5$ ) 谱线的强度和这条谱线经过 ECR 后的透射强度, 利用 (2) 式得到吸收比例  $A_L$ , 然后通过 (3) 式, 计算得出  $1s_5$  亚稳态粒子数密度  $N$ .

### 2.2. 电子温度的测量

利用两条发射谱线强度之比计算电子温度. 只

考虑基态和亚稳态激发对上能级粒子数的贡献, 忽略其他低能级时, 由 (1) 式, 两条发射谱线的强度之比表示为

$$\frac{I_{i,j}}{I_{i',j'}} = \frac{\alpha_{i,j}}{\alpha_{i',j'}} \cdot \frac{\nu_{i,j}}{\nu_{i',j'}} \cdot \frac{b_{i,j}}{b_{i',j'}} \cdot \frac{\frac{n_m}{n_g} \sigma_{\nu_{m \rightarrow i}} + \sigma_{\nu_{g \rightarrow i}}}{\frac{n_m}{n_g} \sigma_{\nu_{m \rightarrow i'}} + \sigma_{\nu_{g \rightarrow i'}}} \quad (5)$$

式中各量的意义同 (1) 式. 对于 Ar 原子的  $2p$  能级, 存在贡献的亚稳态为  $1s_3$  和  $1s_5$ . 但是对于一些  $2p$  能级, 如  $2p_1$ ,  $2p_5$  以及  $2p_8$ ,  $1s_3$  亚稳态粒子激发的贡献远没有  $1s_5$  亚稳态强<sup>[9]</sup>, 因此本实验中暂时忽略了  $1s_3$  亚稳态的贡献,  $n_m$  只包括  $1s_5$  亚稳态粒子数密度. 假设电子能量分布函数服从麦克斯韦分布, 则

$$\sigma_{\nu_{g(m) \rightarrow i}} = C \int_{E_{th}}^{\infty} E \cdot \sigma_{g(m) \rightarrow i}(E) \cdot e^{-\frac{E}{T_e}} dE \quad (6)$$

式中  $C$  为常数,  $E$  为电子能量,  $T_e$  为电子温度,  $\sigma_{g(m) \rightarrow i}(\nu)$  为由于受到电子碰撞, 基态 (或亚稳态) 粒子激发到上能级  $i$  的激发截面. (6) 式表明  $\sigma_{\nu_{g(m) \rightarrow i}}$  是电子温度  $T_e$  的函数, 因此  $I_{i,j}/I_{i',j'}$  也是电子温度  $T_e$  的函数. 本实验测量了 Ar 原子发射谱线 750 nm ( $2p_1 - 1s_2$ ), 751 nm ( $2p_8 - 1s_4$ ) 和 842 nm ( $2p_8 - 1s_4$ ) 的强度, 通过两条发射谱线强度之比 750 nm/842 nm 以及 751 nm/842 nm, 由 (5) 式计算得到电子温度.

## 3. 实验装置

图 1 为 ECR 等离子体发生器及吸收光路示意图. 磁控管产生频率为 2.45 GHz 的微波, 通过波导进入等离子体源区. 源区外的带有水冷装置的磁性线圈可产生 875 G 的磁场, 使电子达到回旋共振. 扩散区的直径为 60 cm, 高为 40 cm, 本底真空可达  $10^{-5}$  Pa. 实验中通入 Ar 气和少量  $N_2$  气, 流量比为 20 sccm:1 sccm, 气压范围为 0.2—0.8 Pa, 吸收功率为 500—800 W. 诊断设备为两台光谱仪, 其中单色仪 (WGD-3 型光栅单色仪, 天津港东公司) 分辨率为 0.3 nm, 测量范围为 200—850 nm, 用来测量 Ar 原子的谱线. JY 光谱仪 (TRIAR550 全自动成像光谱仪, 法国 Jobin Yvon 公司) 分辨率为 0.02 nm, 测量  $N_2$  分子的振动谱线. PC1, PC2 为进行数据分析的两台电脑.

用于测量 Ar 亚稳态粒子数密度的吸收光路包括一台光源、两面光学透镜、光纤以及上述的单色

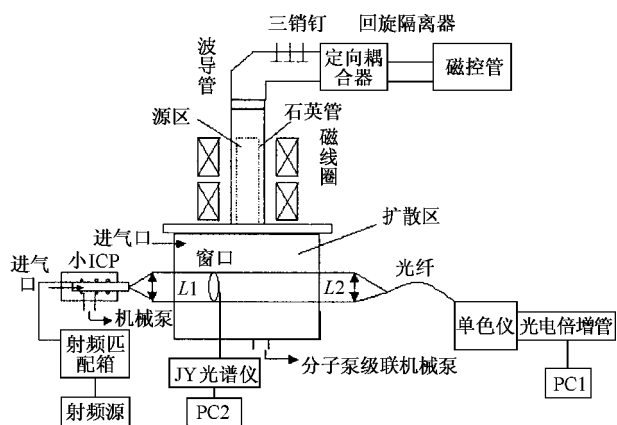


图1 ECR及吸收光路结构简图

仪.光源为小型的电感耦合等离子体发生器,内部石英管的内径为4 cm,长为11 cm,向其中通入Ar气和N<sub>2</sub>气,流量比为20 sccm:1 sccm,由频率为27.13 MHz的射频电源供电,工作时功率为30 W.光源发出的光经透镜L1成为一束直径2 cm的平行光,进入ECR,透射光经L2会聚于光纤处.单色仪测量Ar原子811.5 nm谱线的强度,得到吸收比例.同时单色仪也用来测量Ar原子其他发射谱线的强度,从而计算电子温度.

## 4. 结果与讨论

图2为ECR气体温度随气压的变化.当气压从0.2 Pa到0.8 Pa的过程中,ECR的气体温度从410 K变到约800 K,显然气体温度随着气压不同发生较大的变化,由(3)式这一变化将影响亚稳态粒子数密度,从而由(5)式影响电子温度的计算结果.

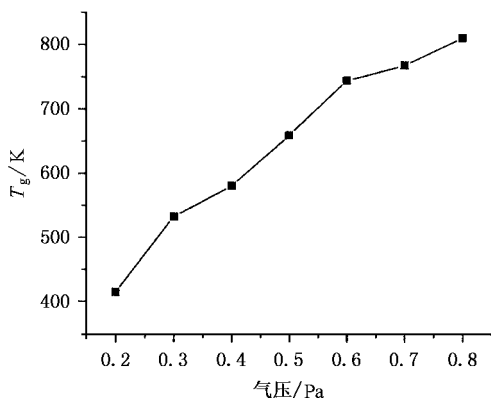


图2 ECR气体温度随气压的变化

图3为Ar的1s<sub>5</sub>亚稳态粒子数密度n<sub>m</sub>随功率的变化.当气压为0.3 Pa,功率在500—700 W范围内变化时,亚稳态粒子数密度随功率的升高而增加.这主要是由于随着吸收功率的增加,电子密度增加,基态粒子由电子碰撞激发到亚稳态的数量增加,因而亚稳态粒子数密度增大.

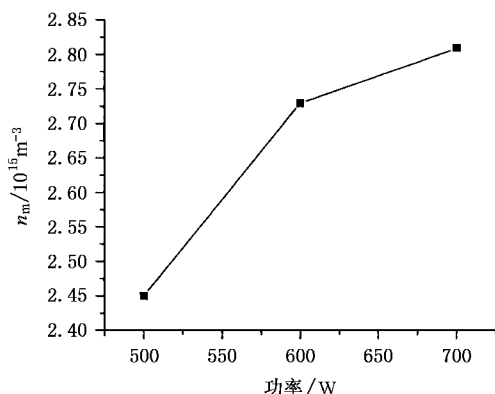


图3 亚稳态粒子数密度随功率的变化

图4为Ar的1s<sub>5</sub>亚稳态粒子数密度n<sub>m</sub>随着气压的变化.当功率为775 W,气压在0.2—0.8 Pa范围内变化时,亚稳态粒子数密度随着气压升高而减小.这是由于当气压升高时,电子温度降低,电子无足够能量使得大量基态粒子激发到亚稳态.另外也可能是由于随着气压的升高,亚稳态粒子与电子或中性粒子碰撞发生退激的数量增大,因此亚稳态粒子数密度随气压升高而减小.

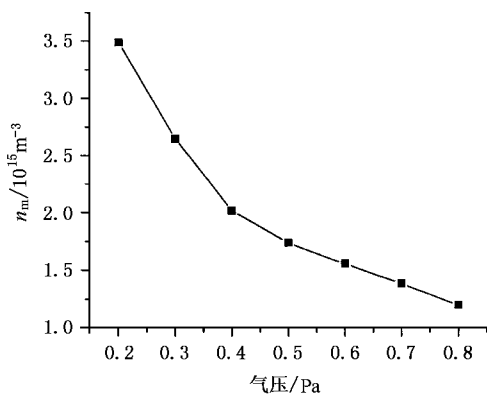


图4 亚稳态粒子数密度随气压的变化

图5为功率在775 W,气压在0.2—0.8 Pa范围内变化时,1s<sub>5</sub>亚稳态粒子数密度n<sub>m</sub>与基态粒子数密度n<sub>g</sub>的比值随着气压的变化.由图可见随着气压的升高,亚稳态粒子数密度与基态粒子数密度的比

值明显降低,从  $1.4 \times 10^{-4}$  降低至  $2.33 \times 10^{-5}$ , 在较高的气压下亚稳态粒子数密度远小于基态粒子数密度.

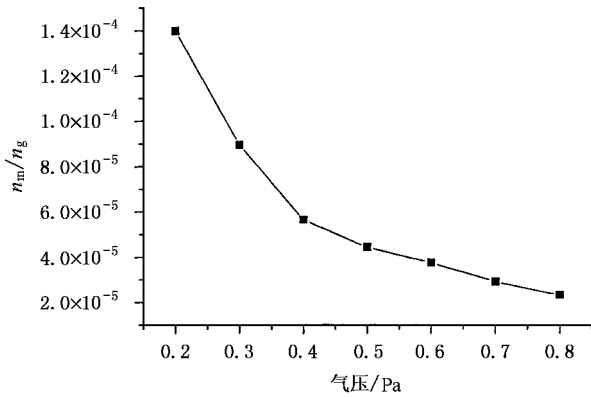


图 5 亚稳态粒子数密度与基态粒子数密度的比值随气压的变化

由两组发射谱线强度之比 750 nm/842 nm 和 751 nm/842 nm 计算得到的电子温度随功率和气压的变化情况分别如图 6, 图 7 所示. 这里我们设计了四种方案来比较不同的实验和计算结果. 方案 1 和方案 2 为综合考虑基态和亚稳态粒子激发对发射谱线的贡献, 分别利用 750 nm/842 nm 和 751 nm/842 nm 谱线强度之比计算电子温度; 方案 3 和方案 4 为只考虑基态粒子激发对发射谱线的贡献, 分别利用 750 nm/842 nm 和 751 nm/842 nm 谱线强度之比计算电子温度. 对于这四种方案我们都考虑了电子温度随着气压和功率的变化情况.

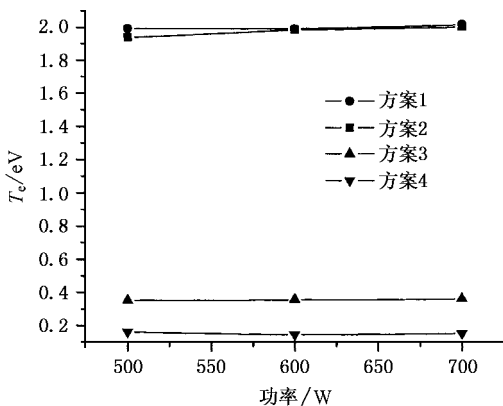


图 6 电子温度随功率的变化

图 6 (条件同图 3) 为电子温度随功率的变化, 从方案 1 和 2 可见当综合考虑基态和亚稳态粒子激发对于发射谱线强度的贡献后, 由 750 nm/842 nm 和 751 nm/842 nm 两组发射谱线强度之比得到的电子

温度都近似为 1.98 eV, 电子温度随功率的变化很小. 根据 Global Model, 电子温度仅由粒子数守恒方程决定, 而与等离子体密度和吸收功率无关<sup>[10]</sup>; 方案 3 和 4 得到的电子温度低于 0.4 eV, 且随选择谱线的不同得到的电子温度不同, 由 750 nm/842 nm 计算得到的电子温度大约是 751 nm/842 nm 计算得到的电子温度的 2 倍.

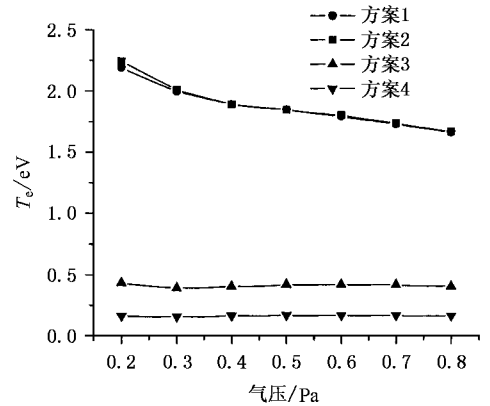


图 7 电子温度随气压的变化

图 7 (条件同图 4) 为电子温度随气压的变化. 方案 1 和 2 得到的电子温度随着气压的增高而降低, 与文献 7 的实验结果符合; 而不考虑亚稳态粒子激发的方案 3 和 4 得到的电子温度变化趋势不明显, 并且由 750 nm/842 nm 计算得到的电子温度大约是 751 nm/842 nm 计算得到的电子温度的 2.5 倍. 对照图 5 和图 7 可见, 当气压为 0.8 Pa 时, 虽然亚稳态粒子数密度远小于基态粒子数密度, 但是从图 7 可以看出即使在 0.8 Pa 时, 亚稳态粒子的激发仍然对于电子温度有较大的影响, 考虑了亚稳态粒子的激发得到的电子温度约是仅考虑基态激发所得电子温度的 5.8 倍.

## 5. 结 论

本文在功率为 500—700 W、气压为 0.2—0.8 Pa 的变化范围内, 采用吸收光谱法测量了 Ar 的  $1s_5$  亚稳态粒子数密度, 然后综合基态和亚稳态粒子激发对发射谱线的贡献, 利用两条发射谱线强度之比计算了电子温度, 得到如下结论.

1. 用发射光谱法测量 Ar 的电子温度时, Ar 的  $1s_5$  亚稳态粒子的激发对电子温度有着重要影响. 当计入了亚稳态激发的贡献后, 所得电子温度比仅考

考虑基态贡献的情况平均升高了约 6 倍。

2. 在本实验的条件下,考虑了亚稳态粒子激发的贡献后,电子温度随气压的升高而降低,对功率的变化不敏感。

3. Ar 的  $1s_5$  亚稳态粒子数密度随着气压的升高而降低,随着功率的升高而增加。

本文的完成要感谢清华大学工程物理系郭志刚老师、马杰同学等与我们进行的颇有启发的讨论和在实验等方面给予的热心帮助,还要感谢清华大学工程物理系提供的充足的实验条件以及北京理工大学邹健老师给予的大力支持和鼓励。

- |   |  |
|---|--|
| [ 1 ] Malyshev M V <i>et al</i> 2000 <i>J. Vac. Sci. Technol. A</i> <b>18</b> 849                                   | <i>Atoms</i> ( Cambridge : Cambridge University Press ) p323   |
| [ 2 ] Malyshev M V and Donnelly V M 1997 <i>J. Vac. Sci. Technol. A</i> <b>15</b> 550                               | [ 7 ] Dony M F <i>et al</i> 1995 <i>Surface &amp; Coatings Technology</i> <b>74</b> 479  |
| [ 3 ] John B <i>et al</i> 1999 <i>Phys. Rev. A</i> <b>59</b> 2749   | [ 8 ] Porter R A and Harshbarger W R 1979 <i>J. Electrochem. Soc. : Solid-State Science and Technology March</i> 460                 |
| [ 4 ] Ethan C <i>et al</i> 1998 <i>Phys. Rev. A</i> <b>57</b> 267   | [ 9 ] Hebner G. A and Miller P A 2000 <i>J. Appl. Phys.</i> <b>87</b> 8304   |
| [ 5 ] Pospieszczyk A <i>et al</i> 1992 <i>Nuclear Instruments &amp; Methods in Physics Research B</i> <b>72</b> 207 | [ 10 ] Lieberman M A 1994 <i>Principles of Plasma Discharges and Materials Processing</i> ( New York : John Wiley & Sons. Inc ) p306 |
| [ 6 ] Mitchell A and Zemansky M 1961 <i>Resonance Radiation and Excited</i>   |  |

## Measurement of metastable state Densities and electron temperatures in an electron cyclotron resonance argon plasma<sup>\*</sup>

Chen Zhuo<sup>1,2)</sup> He Wei<sup>1)</sup> Pu Yi-Kang<sup>1)†</sup>

<sup>1)</sup>*Department of Engineering Physics ,Tsinghua University ,Beijing 100084 ,China )*

<sup>2)</sup>*Department of Physics ,Beijing Institute of Technology ,Beijing 100081 ,China )*

( Received 28 June 2004 ; revised manuscript received 30 August 2004 )

### Abstract

The number of metastable state densities obtained ranges from  $1 \times 10^{15}$  to  $4 \times 10^{15} \text{ m}^{-3}$  in the electron cyclotron resonance ( ECR ) argon plasma by measuring the optical absorption of the 811.5 nm spectral line under the conditions of 0.2—0.8 Pa and 500—800 W. Taking into account the contribution of both the ground state and the  $1s_5$  metastable state to the emissions , the electron temperature  $T_e$  is measured by the ratio of emission lines. Results show that there are obvious differences compared with only considering the metastable state densities.

**Keywords** : optical emission spectroscopy , metastable state densities , electron temperature , ECR plasma

**PACC** : 5270N , 5270K , 5220F

<sup>\*</sup> Project supported by the National Natural Science Foundation of China( Grant No. 10335040 ).

<sup>†</sup>E-mail : puyikang@tsinghua.edu.cn