

05:06:07

Оптические характеристики и параметры лазерной плазмы сурьмы

© А.К. Шуаибов, М.П. Чучман, Л.Л. Шимон

Ужгородский национальный университет,
88000 Ужгород, Украина

(Поступило в Редакцию 15 июля 2002 г.)

Приведены результаты исследования процессов в разлетающейся лазерной плазме сурьмы методом эмиссионной спектроскопии. Исходя из динамики излучения спектральных линий SbI, определена скорость разлета плазмы, время рекомбинации SbII, температура и концентрация электронов. На основании полученных результатов сделан качественный анализ процессов при образовании и разлете лазерной плазмы сурьмы.

Введение

Важным каналом оптимизации технологических процессов с применением лазеров является оптическая диагностика лазерной плазмы, исследование ее характеристик и параметров [1]. Отсутствие полных адекватных моделей лазерной плазмы, в особенности для ряда полупроводников, металлов и соединений на их основании совместно с их широким применением в микроэлектронике (напыление тонких пленок, микрошлифовка), при создании коротковолновых источников излучения и в фотохимии вызывает значительный интерес к исследованиям в этой области [2,3].

Сурьма в чистом виде и в составе кристаллов типа $\text{CuSbS}(\text{Se})_2$ широко применяется в микроэлектронике [4], поэтому ввиду сложности спектров излучения лазерной плазмы на основе многокомпонентных соединений [5] актуальной является диагностика плазмы лазерных факелов на базе отдельных компонент кристаллов при близких условиях накачки.

Техника и методика эксперимента

Лазерная плазма формировалась при действии на массивный образец из особо чистой сурьмы излучения неодимового лазера „ЛТИПЧ-5“, работающего в режиме модулированной добротности. Длина волны генерации лазера $\lambda_r = 1.06 \mu\text{m}$, длительность импульса генерации 20 ns, частота следования равнялась 12 Hz. Лазерный луч при помощи поворотной призмы и линзы с фокусным расстоянием $F = 50 \text{ cm}$ фокусировался на мишень в пятно диаметром 0.3–0.5 mm, что позволяло получить удельную мощность на поверхности $W = 3-5 \cdot 10^8 \text{ W/cm}^2$. Разлеталась плазма в атмосферу с остаточным давлением воздуха 3–7 Pa.

Анализ излучения проводился при помощи монохроматора МДР-2 с дифракционной решеткой 1200 lines/mm. Излучение, попадающее на вход монохроматора, регистрировалось в области длин волн 200–600 nm системой фотоумножитель ФЭУ-106 + самописец КСП-4. Учет относительной спектральной чувствительности монохроматора и фотоумножителя

проводился калибровкой по излучению водородной и вольфрамовой ламп.

Регистрация импульсного излучения осуществлялась на расстояниях $r = 1$ и 7 mm от поверхности образца. Для регистрации импульсов длительностью более $1 \mu\text{s}$ применялись импульсный фотоумножитель „Фотон“ и осциллограф С1-99, импульсы меньшей длительности регистрировались системой фотоумножитель ЭЛУ-14ФС+осциллограф БЛОП-04.

Мишень располагалась под углом 60° к лучу лазера, а отбор излучения проводился перпендикулярно к нему. Расшифровка спектров излучения проводилась по данным работы [6].

Используя найденные интенсивности излучения спектральных линий SbI, динамику их изменения в пространстве и времени, реальным представляется вычисление некоторых параметров плазмы, основываясь на приближении ее равновесности и гомогенности спектральных переходов.

Средняя скорость распространения лазерного факела находилась по положению максимумов свечения на разных расстояниях от мишени, вычисление времени рекомбинации возможно из зависимости логарифма интенсивности I , нормированной на свое максимальное значение I_m от времени t при условии рекомбинационного заселения верхнего уровня. В этом случае наклон прямой $\text{tg } \alpha$ дает время рекомбинации τ_r иона на единицу большей кратности [1]

$$\text{tg } \alpha = \tau_r = \Delta t / \Delta \ln(I/I_m). \quad (1)$$

Температура электронов T_e находилась по методу Орнштейна, исходя из статистики Больцмана, и отношению интенсивностей излучения спектральных линий SbI [7]

$$T_e = \Delta(E_2 - E_1) / \Delta \ln(I_1/I_2), \quad (2)$$

$$T_e = (E_2 - E_1) / k \ln(I_1 A_2 g_2 \lambda_1 / I_2 A_1 g_1 \lambda_2), \quad (3)$$

где: E , g — энергия и статвес верхнего уровня; I — интенсивность спектральной линии; A , λ — вероятность и длина волны перехода.

Исходя из соотношения для τ_r и коэффициента рекомбинации [1], возможна оценка концентрации электронов n_e

$$n_e^{-2} = \tau_r T_e^{-9/2} / 8.75 \cdot 10^{-27} z^3, \quad (4)$$

где z — заряд иона.

Обсуждение результатов

Для учета всех процессов в лазерной плазме необходимо знать характеристики лазерного луча, состояние поверхности и свойства вещества мишени, исследовать механизм взаимодействия излучения с веществом. При взаимодействии лазерного излучения с твердой мишенью в начальные моменты времени эффективно проходит фотоэмиссия электронов, возможна фотосублимация материала мишени, позднее терморазрушение мишени и разлет образовавшейся плазмы. В дальнейшем образование частиц плазмы обуславливается процессами в ней самой [8,9]. Перечисленные факторы приведут к возникновению на поверхности и в некоторой области вблизи нее значительного потенциала [10], который будет понижать энергию образования частиц плазмы и способствовать разлету плазмы в пространстве.

О формировании плазмы и ее движении достаточное количество информации дает анализ спектров и осциллограмм, а базируясь на вычислениях температуры и концентрации электронов, времени образования частиц, можно судить о наиболее характерных процессах в лазерной плазме.

Спектр излучения лазерной плазмы включал интенсивные спектральные линии атомов Sb 217.0–388.8 nm и линии однозарядных ионов сурьмы 347.4–461.3 nm, верхнее энергетическое состояние для которых $E_{ур} = 5-7$ eV SbI и $E_{ур} = 11-12$ eV SbII. Распределение интенсивностей в спектре указывает на положение узкого места рекомбинационного потока при энергии уровня $E = 7.51$ eV и достаточно большие расхождения с сечениями электронного возбуждения [11]. Спектр излучения лазерной плазмы сурьмы представлен на рис. 1.

Типичный вид осциллограмм (рис. 2, 3) представляет два максимума излучения, за исключением излучения ионов вблизи поверхности мишени. С увеличением расстояния от мишени число максимумов для переходов с низколежащих уровней атомов и ионов сурьмы возрастает на один. При данной мощности и длине волны лазера реальные фото- и терморазрушение мишени, накладка этих процессов обуславливает временной ход излучения возле мишени. Энергии вследствие нагрева поверхности недостаточно для образования второго максимума ионов, они образуются лишь вследствие многофотонного фотоэффекта. Этот процесс упрощается значительной шириной энергетических состояний в твердом теле. Соотношение времени жизни для SbI в возбужденном состоянии ≈ 5 ns и времени излучения говорит о дополнительном канале образования частиц

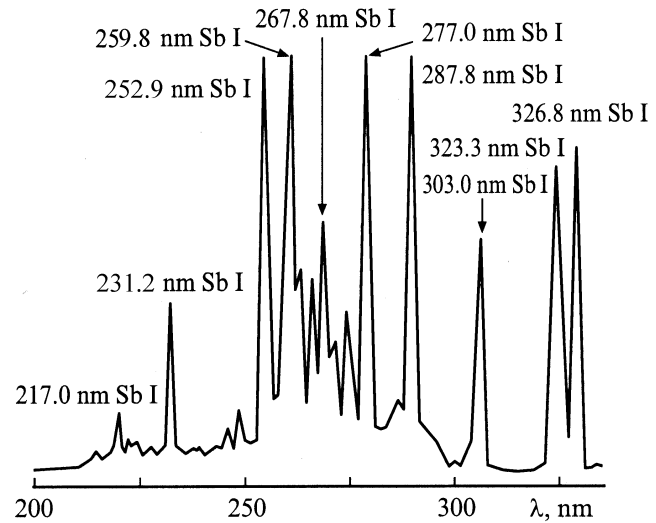


Рис. 1. Участок спектра излучения лазерного факела сурьмы.

при рекомбинации. Рекомбинация и влияние потенциала самой плазмы и поверхности мишени растягивают плазму и ее свечение в пространстве и времени, что отображено на осциллограммах спектральных линий на расстоянии $r = 7$ mm от мишени (рис. 3).

Излучение континуума регистрировалось при $r \leq 3$ mm и также имело характерный вид с двумя максимумами. Причем подложка излучения была значительно завышена в местах предполагаемых полос димеров сурьмы $\Delta\lambda = 210-230$ nm, что видно в спектре.

Распределение максимумов на осциллограммах во времени говорит о наиболее эффективном образовании ионов $E_{ур} = 11.2$ eV и атомов $E_{ур} = 5.7$ eV, за которыми следуют максимумы свечения атомов с большими $E_{ур}$ и лишь под конец лазерного импульса наблюдается максимум свечения для переходов с уровня $E_{ур} = 5.4$ eV. Несмотря на обратный ход высвечивания второго максимума для остальных спектральных линий, он остается в конце. На расстоянии 7 mm от мишени первые максимумы несколько изменяют очередность во времени: $E_{ур} = 11.2, 5.8, 5.4, 5.7$ eV, а второй максимум на осциллограммах появляется в порядке уменьшения энергий $E_{ур}$. Появившиеся дополнительные максимумы атомов и ионов сурьмы совпадают во времени.

Учитывая свойство сурьмы испаряться в виде молекул [6], а также факт перехода почти всей энергии налетающего фотона в энергию электронов атома [12], можно объяснить наиболее эффективное образование частиц плазмы при условии кратности $E_{ур}$ к энергии фотона лазерного излучения и дополнительных максимумов на осциллограммах как следствие диссоциации и диссоциативной рекомбинации ионов Sb_2^+ , Sb_4^+ .

Время рекомбинации ионов SbII, вычисленное по спаду излучения на осциллограммах (рис. 2 и 3), преобразованных к виду, показанному на рис. 4, имело среднее значение 6.2 ns при $r = 1$ mm и 2.7 μ s при

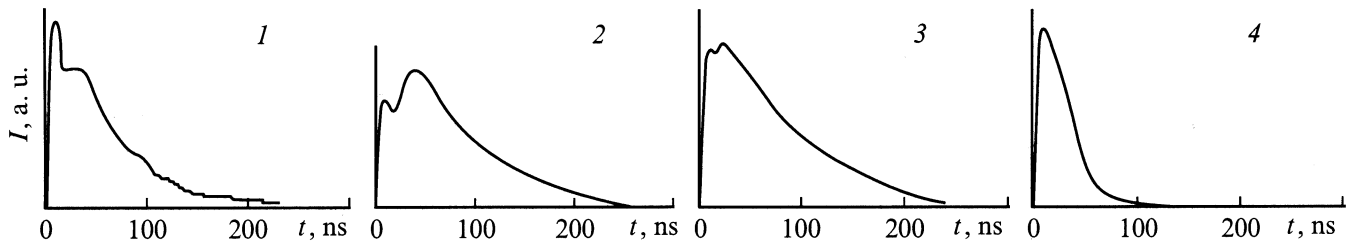


Рис. 2. Осциллограммы спектральных линий $\lambda = 277.0$ nm SbI (1), 287.8 nm SbI (2), 326.8 nm SbI (3), 461.3 nm SbII (4) на расстоянии 1 mm от мишени.

$r = 7$ mm. Трудностью тут является вычет других каналов образования SbI, которые должны или сводиться к рекомбинации, или же быть незначительными, что имеет место на поздних стадиях разлета плазмы при ее остывании.

По осциллограммам излучения спектральных линий SbI также легко вычислить среднюю скорость распространения плазмы и длину лазерного факела. Так, средняя скорость распространения с 1 до 7 mm составляет для первого максимума 5 km/s, а для второго — 2.3 km/s. Из этого следует, что длина лазерного факела на расстоянии 1 mm от мишени составляет 1.1 mm, а на расстоянии $r = 7$ mm — 36 mm. Дополнительную информацию о движении плазмы можно получить учитывая что $\ln(I/I_m) = \ln(N/N_m)$, где N — концентрация атомов с энергией $E_{ур}$, а также изменение со временем по экспоненциальному закону интенсивности и концентрации. На рис. 4 видны прямолинейные участки, указывающие на движение слоев плазмы одинаковой скорости и плотности.

Следует заключить, что в нашем случае в лазерной плазме имеет место перемешивание слоев плазмы разной скорости, приводящее к перераспределению энергии в ней, т.е. к дополнительному каналу рождения частиц.

Представленные на рис. 5 вычисления электронной температуры в лазерной плазме по наиболее интенсивным спектральным линиям SbI говорят об изменении T_e при разлете со временем в рамках 0–6.5 eV, при среднем значении 0.63 eV. Данные коррелируют с работами [13–15], где указано на наличие пиков и уменьшение T_e от фронта к хвосту в лазерной плазме металлов.

Видно, что при взаимодействии с атомами SbI в энергетическом состоянии 5.826 eV электроны больше нагреваются, чем взаимодействуя с SbI $E = 5.696$ eV в начальные моменты времени, но со временем картина обращается. Это отображает преимущество фото- и термопроцессов в начальные моменты и убывание их роли со временем, что сопровождается перераспределением заселенностей уровней SbI при остывании. Значительным фактором при этом является среднее значение $n_e = 8.27 \cdot 10^{17} \text{ cm}^{-3}$, что на два порядка выше, нежели у металлов при аналогичных условиях [16]. Погрешность всех проведенных измерений не превышает 30%.

Если ближе рассмотреть динамику изменения T_e , то можно увидеть характерный набор повторяющихся ступенчатых максимумов. Сопоставив их с максимумами интенсивности, можно видеть, что наибольшая температура частиц плазмы обретается в области совместного фототермовозбуждения. Повторение структуры макси-

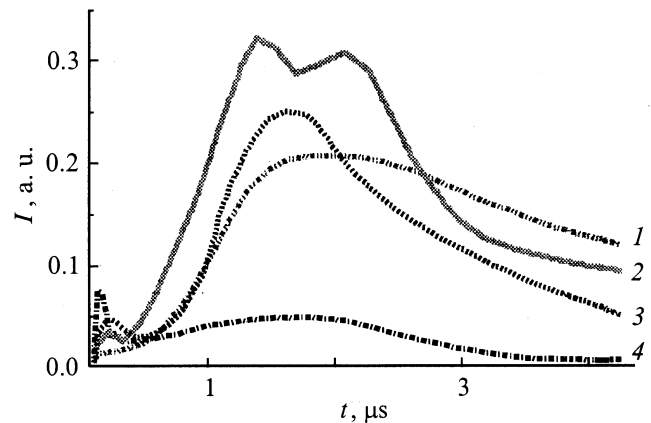


Рис. 3. Осциллограммы спектральных линий $\lambda = 277.0$ nm SbI (1), 287.8 nm SbI (2), 326.8 nm SbI (3), 461.3 nm SbII (4) на расстоянии 7 mm от мишени.

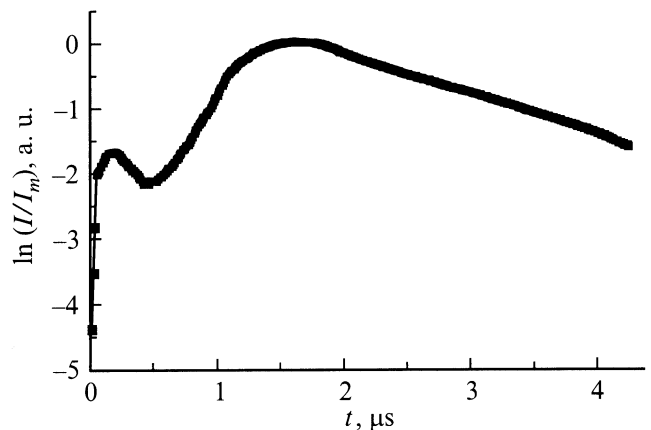


Рис. 4. Зависимость логарифма интенсивности свечения спектральной линии SbI $\lambda = 326.8$ nm, нормированной на свое максимальное значение, от времени на расстоянии от мишени 7 mm.

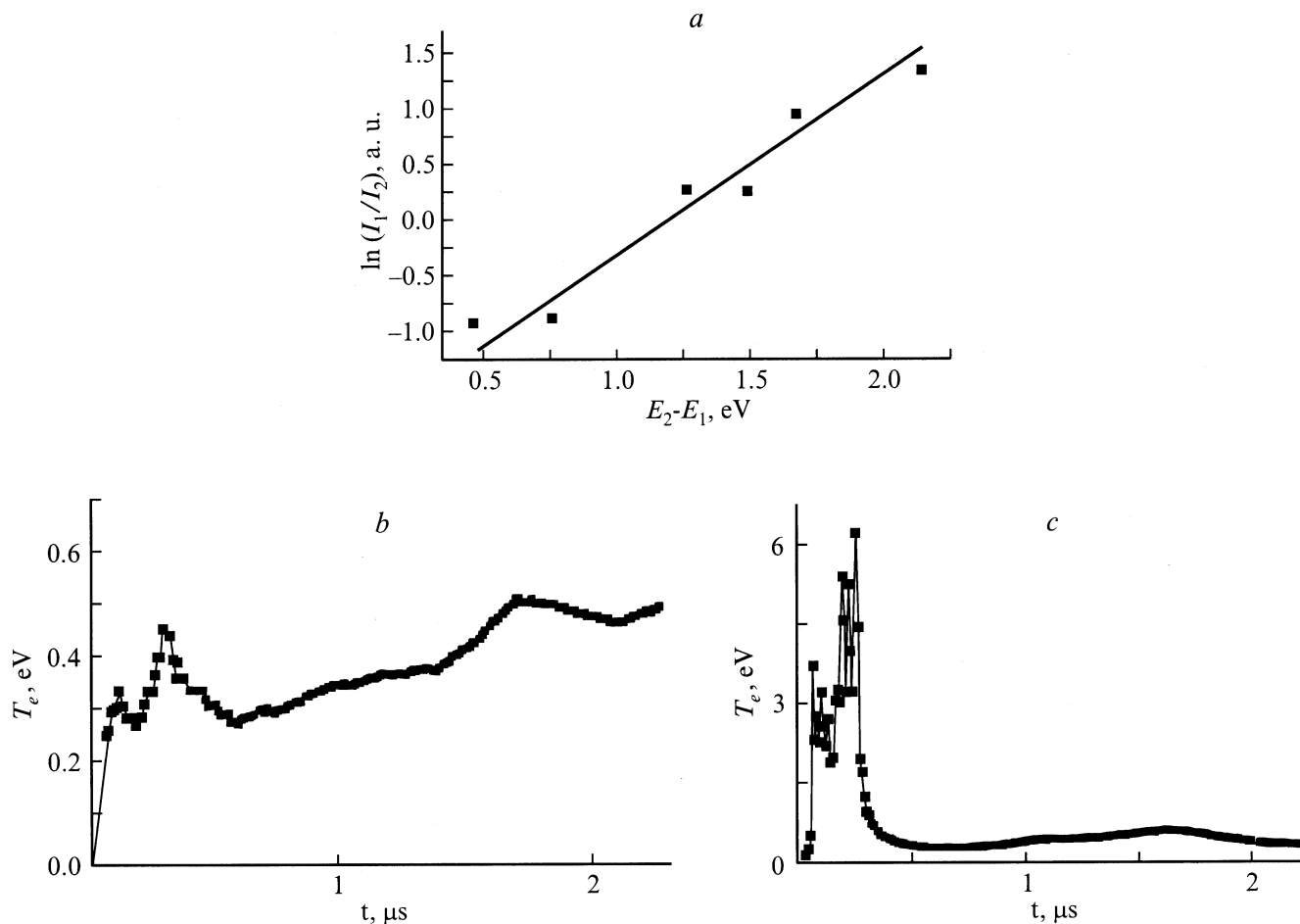


Рис. 5. *a* — зависимость логарифма отношения усредненных интенсивностей спектральных линий SbI от разницы энергий их верхних уровней, *b* и *c* — временная динамика температуры электронов, вычисленная по отношению интенсивностей спектральных линий $\lambda_1 = 287.8 \text{ nm}$ и $\lambda_2 = 277.0 \text{ nm}$ (*b*); $\lambda_1 = 287.8 \text{ nm}$ и $\lambda_2 = 326.8 \text{ nm}$ (*c*) SbI на расстоянии от мишени 7 mm.

мумов свидетельствует о автостимуляции нагрева и возбуждения перепоглощением.

Поэтому при таком режиме образования плазмы в области перекрытия возбуждающих факторов эффективно должна проходить не только диссоциация комплексных ионов, но и образование Sb^+ , что на осциллограмме излучения иона (рис. 3) подтверждено дополнительным подъемом интенсивности между двумя основными максимумами.

Выводы

Таким образом, проведенный качественный анализ свечения дает возможность модельно прогнозировать поведение разлетающейся эрозивной лазерной плазмы, что важно для многих технологических применений.

К особенностям лазерной плазмы в нашем случае нужно отнести следующее: два этапа возбуждения как следствие многофотонного и теплового разрушения мишени, автостимуляция процессов в плазме перепоглощением, перекрытие слоев плазмы разной кинетической

энергии, образование и разрушение тяжелых комплексных частиц, своеобразный механизм перераспределения энергии в плазме из-за высокого значения электронной концентрации и связанную с ней эффективность процессов рекомбинации.

Авторы выражают благодарность А.И. Дашенку за помощь при проведении экспериментов.

Список литературы

- [1] Сухов Л.Т. Лазерный спектральный анализ. Новосибирск: Наука, 1990. 143 с.
- [2] Юмашев К.В., Моляревич А.М., Прокошин П.В. и др. // Квантовая электроника. 1998. Т. 25. № 1. С. 73–76.
- [3] Котлярчук Б.К., Попович Д.И., Пентко В.Я. // ЖТФ. 1987. Т. 57. Вып. 9. С. 1824–1826.
- [4] Besson D., Bardotti L., Hoareau A., Prevel B., Treilleux M., Esnouf C. // Mater. Sci. Eng. B. 1999. Vol. 56. P. 51–60.
- [5] Шуайбов А.К., Шимон Л.Л., Чучман М.П. // ЖТФ. 2001. Т. 71. Вып. 5. С. 85–89.
- [6] Смирнов Ю.М. // Хим. выс. энергий. 1992. Т. 26. № 1. С. 7–12.

- [7] Зейдель А.Н., Калитеевский Н.И., Липис Л.В., Чайка М.П. Эмиссионный спектральный анализ атомных материалов. Л., М.: Физматгиз, 1960. 688 с.
- [8] Анисимов С.И., Имас Я.А., Романов Г.С., Ходыко Ю.В. Действие излучения большой мощности на металлы. М.: Наука, 1970. 272 с.
- [9] Арютюнян Р.В., Баранов В.Ю., Большой В.А., Малюта Д.Д., Себрант А.Ю. Воздействие лазерного излучения на металлы. М.: Наука, 1989. 355 с.
- [10] Быковский Ю.А., Конохов И.Ю., Пекленков В.Д. // Квантовая электрон. 2001. Т. 31. № 1. С. 45–49.
- [11] Шуаибов А.К., Шимон Л.Л., Дащенко А.И., Чучман М.П. // Укр. физ. журн. 2001. Т. 46. № 11. С. 1144–1147.
- [12] Фано У., Купер Дж. Спектральные распределения сил осцилляторов в атомах. М.: Наука, 1972. 200 с.
- [13] Новодворский О.А., Филиппова Е.О., Храмова О.Д. и др. // Квантовая электрон. 2001. Т. 31. № 2. С. 159–163.
- [14] Бураков В.С., Бохонов А.Ф., Науменков П.А., Неделько М.И., Тарасенко Н.В. // ЖПС. 1998. Т. 65. № 3. С. 426–432.
- [15] Dreyfus R.W. // J. Appl. Phys. 1991. Vol. 69. № 3. P. 1721–1729.
- [16] Смирнов Ю.М. // УФН. 1994. Т. 164. № 7. С. 665–703.