

04;07;12

## Временные зависимости интенсивности излучения спектральных линий из плазмы, образующейся при действии мощного инфракрасного лазерного излучения на германиевую мишень

© М.П. Чучман, А.К. Шуаибов

Ужгородский национальный университет,  
88000 Ужгород, Украина  
e-mail: ishev@univ.uzhgorod.ua

(Поступило в Редакцию 5 июня 2007 г.)

Методом эмиссионной спектроскопии проведено изучение временных зависимостей интенсивностей излучения спектральных линий из лазерной плазмы германия. Лазерная плазма формировалась при действии мощного импульсно-периодического инфракрасного излучения неодимового лазера на германиевую мишень, а осциллограммы интенсивности излучения исследовались на расстоянии 1 и 7 мм от нее. На их основе определены временные зависимости таких параметров плазмы, как время рекомбинации ионов, температура и концентрация электронов. Проанализированы выявленные особенности временных зависимостей эмиссионных характеристик и параметров плазмы.

PACS: 41.75.Jv, 52.38.-r

### Введение

Германий наряду с кремнием широко используется в электронной технике. Оксиды и халькогениды на его основе имеют оптические свойства, очень привлекательные для использования в оптических коммуникациях [1–4]. Перспективным для получения пленок таких соединений в качестве активных элементов различных приборов выступает метод импульсного лазерного напыления. Энергия и состав попадающих на подложку частиц определяют свойства получаемой пленки [5–8]. Накопление данных о формировании, распространении, взаимодействии с подложкой или конденсации частиц в такой плазме при различных условиях напыления тонких пленок важно для понимания и прогнозирования эволюции лазерного эрозионного факела. Такая задача представляет и фундаментальный интерес ввиду все более широкого использования лазерных технологических процессов синтеза, обработки и анализа различных материалов. Некоторые параметры таких технологий (сохранение стехиометрии соединений, точность, отсутствие непосредственного контакта с химически агрессивной средой и т.д.) делают их незаменимыми при миниатюризации электронных приборов.

В настоящей работе приводятся результаты исследования временных зависимостей интенсивности излучения спектральных линий из лазерной плазмы германия на начальных этапах ее эволюции и взаимодействия с внешним газом низкого давления. Получены также временные зависимости энергетических параметров на заднем фронте лазерного факела.

### Техника и методика эксперимента

Лазерная плазма возникала при действии сфокусированного в площадку диаметром 0.45 мм лазерного

излучения на мишень из особо чистого германия. Мишень находилась в вакуумной камере с остаточным давлением воздуха 3–12 Па. Параметры излучения неодимового лазера LTPCh5 были следующими: удельная мощность на поверхности  $W = 5 \cdot 10^8 \text{ W/cm}^2$ ; длина волны излучения  $\lambda = 1.06 \mu\text{m}$ ; длительность импульса генерации  $\tau = 20 \text{ ns}$ ; частота повторения  $f = 12 \text{ Hz}$ . Система регистрации излучения плазмы лазерного факела состояла из линзы с фокусным расстоянием  $F = 11 \text{ cm}$ , с помощью которой отбиралось излучение лазерного факела и направлялось на входную щель монохроматора MDR-2, который был оснащен дифракционной решеткой 1200 line/mm. Разрешение по длинам волн составляло 0.2 nm. Зависимость интенсивности излучения от времени с удаленных на 1 и 7 мм от мишени участков плазмы лазерного факела исследовалась при помощи импульсного фотоумножителя FOTON и осциллографа S1-99 в области длин волн 200–600 nm. Временное разрешение составляло  $\sim 30 \text{ ns}$ . Точность измерения интенсивности была не хуже 10%. Расшифровка спектров проводилась по данным справочников [9,10]. Полученные в ходе исследований временные зависимости относительных интенсивностей спектральных линий, нормированных на спектральную чувствительность фотоумножителя, дают возможность сравнить интенсивности излучения между собой и рассчитать некоторые параметры плазмы лазерного факела, такие как температура и концентрация электронов, а также время рекомбинации ионов.

Для этого построены временные зависимости интенсивности излучения спектральной линии, которая отвечает переходам с высоковозбужденных состояний атомов в логарифмическом масштабе. Наклон такой зависимости дает значение времени рекомбинации односторонних ионов [11]:

$$t_r = \frac{\Delta t}{\Delta \ln(I \cdot \text{const})}. \quad (1)$$

Здесь  $t_r$  — время рекомбинации,  $\Delta \ln(I \cdot \text{const})$  — изменение логарифма интенсивности (нормированной на некоторый множитель  $\text{const}$ ) на отрезке времени  $\Delta t$ .

Используя относительные значения интенсивностей излучения спектральных линий и спектроскопические константы для этих спектральных линий [9], можно вычислить заселенности возбужденных состояний атомов [12]:

$$N_m = \sum_i I_{mi} \lambda_{mi} / A_{mi}, \quad (2)$$

где  $N_m$  — заселенность  $m$ -го возбужденного уровня,  $I_{mi}$  — интенсивность излучения при переходе с  $m$ -го на  $i$ -й уровень,  $A_{mi}$  — вероятность перехода,  $\lambda_{mi}$  — длина волны излучения.

Аппроксимируя прямой логарифмическое представление распределения заселенностей ( $\ln(N/g)$ , где  $g$  — статистический вес (статвес) уровня) возбужденных состояний атомов по энергиям ( $E$ ), возможно вычислить температуру электронов ( $T_e$ ) плазмы [12]:

$$T_e = \Delta E / \Delta \ln(N/g). \quad (3)$$

Исходя из полученных значений для  $T_e$  и  $t_r$  проведена оценка концентрации электронов ( $n_e$ ) [11]:

$$n_e = (8.75 \cdot 10^{-27} z^3 t_r T_e^{-9/2})^{-1/2}, \quad (4)$$

где  $z$  — заряд рекомбинирующего иона.

Получив временные зависимости для времени рекомбинации ионов и температуры электронов, можно получить и временную зависимость концентрации электронов. Единственный недостаток такого подхода — возможность определения времени рекомбинации и соответственно концентрации электронов лишь на заднем фронте плазменного факела, когда интенсивность излучения уменьшается, и основным процессом заселения верхних возбужденных состояний атомов и ионов является трехчастичная рекомбинация [11].

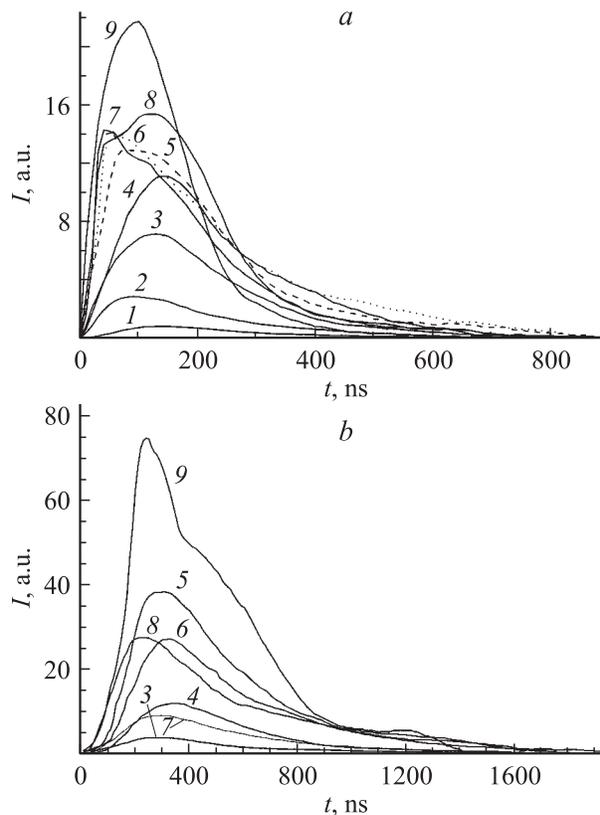
## Результаты экспериментов

Спектры излучения лазерной эрозионной плазмы в области длин волн 200–600 нм на расстоянии 1 и 7 мм от мишени состоят из спектральных линий атомов германия. Интенсивность излучения спектральных линий атомов германия при удалении плазмы от мишени от одного до семи миллиметров увеличивается или изменяется мало. На рис. 1 приведены осциллограммы интенсивности излучения спектральных линий с учетом спектральной чувствительности регистрирующей аппаратуры. Спектроскопические характеристики излучения, представленного на рис. 1, показаны в таблице. В таблице представлены длины волн спектральных линий, вероятности соответствующих им переходов, статвес и энергия верхнего уровня, электронная конфигурация и обозначение термина электронного состояния для верхнего и нижнего уровней излучательных переходов.

Спектроскопические характеристики излучения атомов германия

$\lambda$ , nm	$A$ , $10^8 \text{ s}^{-1}$	$g_{\text{up}}$	$E_{\text{up}}$ , eV	$K_{\text{up}}$	$K_{\text{low}}$
241.7	1.1	5	6.01	$p4d^1D_2$	$4p^2^1D_2$
259.3	0.77	5	4.85	$p5s^3P_2$	$4p^2^3P_1$
265.1	1.65	5	4.85	$p5s^3P_2$	$4p^2^3P_2$
269.1	0.52	3	4.67	$p5s^3P_1$	$4p^2^3P_1$
270.9	2.74	1	4.64	$p5s^3P_0$	$4p^2^3P_1$
275.5	0.91	3	4.67	$p5s^3P_1$	$4p^2^3P_2$
303.9	2.52	3	4.96	$p5s^1P_1$	$4p^2^1D_2$
326.9	0.25	3	4.67	$p5s^3P_1$	$4p^2^1D_2$
422.7	0.21	3	4.96	$p5s^1P_1$	$4p^2^1S_0$

На расстоянии 1 мм от мишени на осциллограммах излучения спектральных линий можно отметить наличие двух максимумов. Первый максимум наблюдается при времени около 70, второй — при  $\sim 130$  ns. На зависимости интенсивности излучения от времени для некоторых спектральных линий имеется лишь один максимум излучения, совпадающий со временем появления первого или второго максимума. Две из таких спектральных линий характеризуются наибольшей и наименьшей (рис. 1) энергией верхнего возбужденного уровня. Это спектральная линия 270.9 нм Ge I ( $E_{\text{up}} = 4.64$  eV), максимум



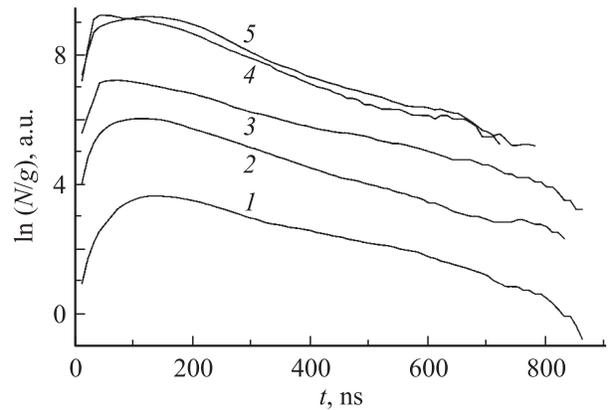
**Рис. 1.** Осциллограммы излучения лазерной эрозионной плазмы германия на расстоянии 1 (a) и 7 (b) мм от мишени: 1 — 241.7; 2 — 359.3; 3 — 265.1; 4 — 269.1; 5 — 275.5; 6 — 270.9; 7 — 422.7; 8 — 326.9; 9 — 303.9 нм Ge I.

которой при времени  $\sim 70$  ns, а также спектральная линия 241.7 nm Ge I ( $E_{\text{ур}} = 6.01$  eV), с максимумом около 130 ns. Из рис. 1 также видно, что уменьшение интенсивности излучения при переходах с энергетического уровня  $E_{\text{ур}} = 4.64$  eV происходит медленней, чем для других спектральных линий, из-за чего уже при времени  $\sim 500$  ns интенсивность такого излучения становится наибольшей.

В разных пространственных областях плазмы условия и процессы образования возбужденных состояний атомов германия отличаются. На расстоянии 1 mm от мишени на виде осциллограмм излучения спектральных линий еще может проявляться специфика испарения мишени и образования плазмы и уже должна проявляться специфика взаимодействий расширяющегося плазменного факела с внешним газом. Судя по времени появления максимумов для излучения спектральных линий при переходах с уровней, имеющих наибольшую и наименьшую энергию, можно предположить, что на переднем фронте плазмы преобладает возбуждение атомов германия при столкновениях с электронами, а при времени появления второго максимума излучения преобладают рекомбинационные процессы, приводящие к образованию высоковозбужденных частиц. Это свидетельствует о более высокой температуре переднего фронта плазменного факела, чем других его частей, и о значительной роли кинетических процессов на заднем фронте плазмы лазерного факела.

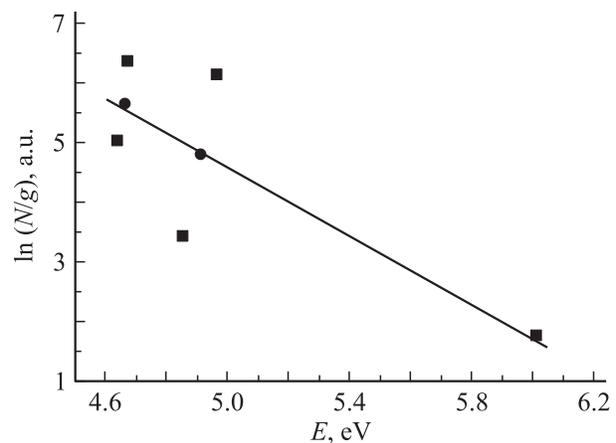
На расстоянии 7 mm от мишени зависимость интенсивности излучения спектральных линий из лазерной плазмы имеет один четко выраженный максимум, время появления которого для большинства спектральных линий составляет около 300 ns. Процессы образования возбужденных состояний атомов проходят достаточно монотонно и однотипно во всех областях плазмы. Параметры и состав лазерной плазмы должны быть более однородными, чем на расстоянии 1 mm от мишени. Зато при переходах с одного верхнего уровня на различные нижние наблюдается отклонение времени появления максимума излучения спектральной линии от среднего значения. Наглядно продемонстрировать такую особенность можно на примере верхнего уровня  $p5s^3P_1$  с энергией 4.67 eV, причем как на расстоянии 1, так и на расстоянии 7 mm от мишени (рис. 1, см. таблицу). Отличается время наблюдения максимумов на осциллограммах интенсивности излучения для спектральных линий 326.9; 275.5; 269.1 nm Ge I, а также скорость возрастания и снижения интенсивности.

На рис. 2 представлены зависимости логарифма заселенности ( $\ln(N/g)$ ) для возбужденных состояний атомов германия от времени. Видно, что скорость нарастания заселенности для нижних возбужденных состояний выше, а максимум появляется быстрее. Изменение заселенности возбужденного состояния проходит более монотонно с увеличением его энергии. На расстоянии 7 mm от мишени положение максимумов для исследуемых заселенностей, как и скорость изменения заселенностей,

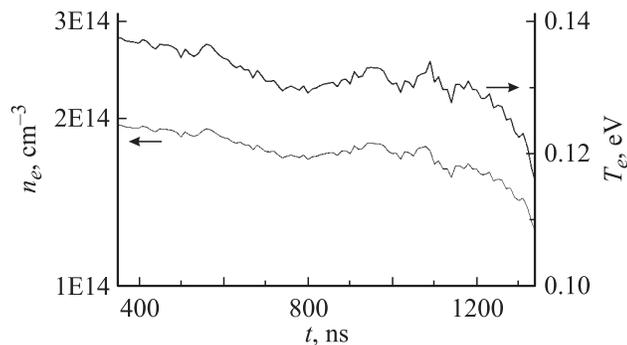


**Рис. 2.** Зависимость логарифма заселенности от времени для возбужденных состояний атомов ( $1 - p4d^1D_2 E_{\text{ур}} = 6.01$ ;  $2 - p5s^3P_2 E_{\text{ур}} = 4.85$ ;  $3 - p5s^3P_0 E_{\text{ур}} = 4.64$ ;  $4 - p5s^1P_1 E_{\text{ур}} = 4.96$ ;  $5 - p5s^3P_1 E_{\text{ур}} = 4.67$  eV) в лазерной плазме германия на расстоянии 1 mm от мишени.

вплоть до более резкого их спада на заднем фронте, отличаются мало. Изменение заселенностей возбужденных состояний атомов во времени можно представить и как зависимость  $\ln(I \cdot \text{const})$  от времени, что дает возможность вычисления времени рекомбинации ионов в лазерной плазме. На расстоянии 1 mm от мишени, как и на расстоянии 7 mm, время рекомбинации ионов остается постоянным в широком временном интервале. Оно составляет 220 и 411 ns на расстоянии 1 и 7 mm от мишени соответственно. Также зависимость логарифма заселенности от времени для возбужденных состояний атомов германия позволяет определить температуру электронов плазмы лазерного факела. Для этого было проанализировано распределение заселенностей возбужденных состояний атомов германия по энергиям в различные моменты времени. Типичный вид такого распределения показан на рис. 3. Вид распределения засе-



**Рис. 3.** Вид распределения по энергиям для заселенностей возбужденных состояний атомов германия при времени 600 ns на расстоянии 1 mm от мишени. Кружками обозначено усреднение заселенностей возбужденных состояний, незначительно отличающихся по энергии. Усредненное распределение показано прямой.



**Рис. 4.** Зависимость температуры и концентрации электронов от времени на заднем фронте лазерного факела германия (расстояние от мишени 7 мм).

ленностей возбужденных состояний атомов германия по энергиям указывает на перераспределение величин заселенностей между расположенными близко по энергии состояниями. Причем уровни, расположенные несколько выше по энергии, заселяются более эффективно. Отклонение величины заселенности от среднего значения для таких уровней одинаково как в меньшую, так и в большую сторону. Такой вид распределения характерен как для расстояния 1 мм, так и для расстояния 7 мм от мишени.

Монотонная и мало отличающаяся скорость изменения заселенностей для различных возбужденных состояний приводит к незначительному изменению температуры и концентрации электронов со временем на заднем фронте плазменного факела. На отрезке времени 200–600 нс, для расстояния от мишени 1 мм, температура и концентрация электронов очень медленно увеличиваются, а на отрезке времени 400–1300 нс для расстояния от мишени 7 мм — очень медленно уменьшаются.

Зависимость от времени для параметров лазерной плазмы на ее заднем фронте показана на рис. 4 для расстояния 7 мм от мишени. Такое изменение параметров плазмы можно представить в виде среднего значения с максимальным изменением на 10% для обоих расстояний от мишени при погрешности не прямых измерений, не превышающей 20%. Температура и концентрация электронов, усредненные таким образом, на расстояниях 1 и 7 мм от мишени составляют соответственно 0.32 эВ,  $1.2 \cdot 10^{15} \text{ см}^{-3}$  и 0.13 эВ,  $1.9 \cdot 10^{14} \text{ см}^{-3}$ .

## Выводы

Исследование временных зависимостей интенсивностей излучения атомов германия из лазерной плазмы на расстоянии 1 мм от мишени показало, что изменение со временем для интенсивностей спектральных линий обусловлено изменением условий формирования возбужденных состояний атомов в различных пространственных частях плазмы, характеризующейся неоднородностью параметров. На расстоянии 7 мм от мишени

наблюдается более монотонное изменение интенсивностей спектральных линий атомов германия со временем. Отличия зависимости интенсивности от времени для некоторых спектральных линий обусловлены в основном спецификой распада одного верхнего уровня по нескольким излучательным каналам.

На расстоянии 1 и 7 мм от мишени обнаружено специфическое перераспределение между величинами заселенностей возбужденных состояний, энергетическое положение которых отличается незначительно. Такие заселенности одинаково отклоняются в большую и меньшую сторону от среднего значения соответственно для несколько большего и меньшего энергетического состояния. Временную зависимость параметров плазмы на ее заднем фронте можно охарактеризовать постоянным средним значением, отклонение от которого находится в рамках 10% как на расстоянии 1, так и 7 мм от мишени. Погрешность не прямых изменений не превышает 20%. На отрезке времени 200–600 нс для расстояния от мишени 1 мм средние значения для температуры и концентрации электронов, а также времени рекомбинации однозарядных ионов составляют соответственно 0.32 эВ,  $1.2 \cdot 10^{15} \text{ см}^{-3}$  и 220 нс. Аналогичные параметры плазмы для расстояния от мишени 7 мм при времени 400–1300 нс составляют 0.13 эВ,  $1.9 \cdot 10^{14} \text{ см}^{-3}$  и 411 нс.

## Список литературы

- [1] *Fayek S.A.* // Infrared Physics & Technology. 2005. Vol. 46. P. 193–198.
- [2] *Martino M., Caricato A.P., Fernandez M., Leggieri G., Jha A., Ferrari M., Mattarelli M.* // Thin Solid Films. 2003. Vol. 433. P. 39–44.
- [3] *Caricato A.P., De Sario M., Fernandez M., Ferrari M., Leggieri G., Luches A., Martino M., Montagna M., Prudenzano F., Jha A.* // Appl. Surf. Sci. 2003. Vol. 208–209. P. 632–637.
- [4] *Mailis S., Reekie L., Pissadakis S., Barrington S.J., Eason R.W., Vainos N.A., Grivas C.* // Appl. Phys. A. 1999. Vol. 69. P. S671–S674.
- [5] *Riabinina D., Chaker M., Rosei F.* // Appl. Phys. Lett. 2006. Vol. 89. P. 131 501 (1–3).
- [6] *Wolf P.J.* // J. Appl. Phys. 1994. Vol. 76. N 3. P. 1480–1486.
- [7] *Riabinina D., Durand Ch., Chaker M., Rowell N., Rosei F.* // Nanotechnology. 2006. Vol. 17. P. 2152–2155.
- [8] *Vega F., Afonco C.N., Solis J.* // J. Appl. Phys. 1993. Vol. 75. N 5. P. 2472–2477.
- [9] *Smith P.L., Heise C., Esmond J.R., Kurucz R.L.* Atomic spectral line database from CD-ROM 23 of R.L. Kurucz. Cambridge: Smithsonian astrophysical observatory, 1995 (<http://cfa-www.harvard.edu/amp>).
- [10] *Зайдель А.Н., Прокофьев В.К., Райский С.М., Славный В.А., Шрейдер Е.Я.* Таблицы спектральных линий. М.: Наука, 1969. 784 с.
- [11] *Сухов Л.Т.* Лазерный спектральный анализ. Новосибирск: Наука, 1990. 143 с.
- [12] *Методы исследования плазмы* / Под ред. В. Лохте-Хольтгревена. М.: Мир, 1971. 552 с.