

文章编号: 2095-4980(2022)08-0804-06

太赫兹光谱诊断等离子体电子密度实验及模拟

赵亚锐, 崔紫宵, 吴 鼎, 冯春雷, 丁洪斌*

(大连理工大学 三束材料改性教育部重点实验室, 辽宁 大连 116024)

摘 要: 近年来, 太赫兹时域光谱技术(THz-TDS)被用于多种等离子体源的电子密度诊断研究中, 但其可靠性程度评估工作开展较少, 亟需补齐相应研究。本文将 THz-TDS 用于诊断电感耦合等离子体源(ICP)的电子密度, ICP 驱动频率为 13.56 MHz, 功率为 250~400 W, 工作介质为氩气, 气压为 30~99 Pa。诊断结果显示电子密度随输入功率和气压单调递增, 电子密度范围为 10^{13} ~ 10^{14} cm⁻³。同时, 利用 COMSOL Multiphysics 构建漂移扩散模型对该条件下等离子体电子密度进行数值计算研究。结果显示: 实验测量与数值计算的电子密度值定量吻合较好, 且两者随气压变化趋势一致。证实了 THz-TDS 应用到等离子体诊断领域中具有可靠性高、稳定性好等优异特性, 具有非常广阔的发展潜力。

关键词: 太赫兹时域光谱技术; 等离子体诊断; 电子密度; 数值计算

中图分类号: TN29; TP391.41

文献标志码: A

doi: 10.11805/TKYDA2021278

Experimental and simulation of diagnosing plasma electron density by THz spectroscopy

ZHAO Yarui, CUI Zixiao, WU Ding, FENG Chunlei, DING Hongbin*

(Key Laboratory of Materials Modification by Laser, Ion and Electron Beams, Chinese Ministry of Education, Dalian University of Technology, Dalian Liaoning 116024, China)

Abstract: Recently, Terahertz Time Domain Spectroscopy(THz-TDS) has been proposed to measure electron density of plasma. Nevertheless, the method still needs to be further verified by estimating the reliability and practicability using theoretic or other experimental methods. In this work, the THz-TDS technique is applied to measure the electron density of Inductively Coupled Plasma(ICP). The ICP discharge is operated in the H-mode with a RF power supply of 13.56 MHz at various input powers from 250 W to 400 W under argon pressures from 39 Pa to 99 Pa. It is observed that electron densities monotonically increase with the increase of RF input power and argon pressures, and the measured electron densities are in the range of 10^{13} ~ 10^{14} cm⁻³ under the given conditions. Meanwhile, a fluid numerical simulation based on COMSOL Multiphysics using drift-diffusion model is adopted to investigate the characteristics of the discharge plasma at the given powers and pressures. The results show that the simulated electron densities are in qualitative agreement with the measured results, which supports that the measurement method using THz-TDS is feasible. Furthermore, the variation trends of the electron density with the pressures obtained by simulation and measurement are also similar, which further verifies the application potential of the THz-TDS for non-invasive plasma electron density measurement.

Keywords: Terahertz-Time Domain Spectroscopy; plasma diagnostic; electron density; numerical simulation

电感耦合等离子体源(ICP)具有电子密度高、空间分布均匀等优异特性, 广泛用于半导体加工制造、薄膜沉积和材料改性等诸多领域。许多基于 ICP 的分析测试技术也蓬勃发展起来, 如电感耦合等离子体发射光谱

收稿日期: 2022-02-12; 修回日期: 2022-03-14

基金项目: 国家重点研发计划资助项目(2017YFE0301304); 国家自然科学基金资助项目(12005034); 中国博士后基金资助项目(2019M661087)

*通信作者: 丁洪斌 email:hdng@dlut.edu.cn

(Inductively Coupled Plasma Optical Emission Spectrometer, ICP-OES)和电感耦合等离子体质谱(Inductively Coupled Plasma Mass Spectrometry, ICP-MS)等。等离子体的参数诊断研究对其发展和应用具有重要意义,电子密度是等离子体核心参数之一,目前已成功开发出许多诊断方法,如朗缪尔探针^[1]、发射光谱^[2]、微波干涉^[3]以及汤姆逊散射^[4]等。最近,太赫兹时域光谱技术(THz-TDS)在等离子体电子密度诊断中展示出应用潜力。当太赫兹波通过等离子体时发生相互作用,造成太赫兹波相位变化,该相移与等离子体电子密度紧密相关。该方法与微波干涉测量法类似,但不同之处在于使用了超短脉冲的宽带太赫兹波(0.1至几太赫兹,持续时间为几皮秒)替代连续的单色微波辐射,诊断范围和稳定性都得到了大幅提升,尤其适用于高电子密度等离子体诊断。

目前,THz-TDS技术已经用于多种等离子体源诊断中,如纳秒脉冲放电等离子体^[5]、射频放电等离子体^[6]以及飞秒激光诱导空气等离子体^[7]等。但有关THz-TDS诊断等离子体准确性评估的工作开展很少,2019年丁洪斌课题组首次完成THz-TDS协同激光汤姆逊散射原位诊断等离子体参数对比研究,初步证实了该方法的可靠性^[8]。本文将THz-TDS应用于ICP不同功率及不同气压下H模放电等离子体电子密度诊断中,并利用COMSOL Multiphysics构建了漂移扩散模型对该条件下等离子体电子密度进行数值计算研究,便于与实验结果进行对比研究,深入理解物理机制。

1 实验装置

实验装置如图1所示,THz-TDS(Zomega, Z3-XL)系统由一台钛宝石飞秒振荡器(Coherent, vitara)泵浦,输出中心波长为800 nm,脉宽为35 fs,平均功率为120 mW,重复频率为80 MHz。THz-TDS系统光路为:飞秒激光被分束棱镜分为两束,一束用于产生太赫兹辐射,称为泵浦光;另一束用于探测太赫兹辐射,称为探测光。半波片放置于分束棱镜之前,通过调节激光偏振方向以控制泵浦光和探测光的相对能量,本实验中,泵浦光和探测光能量之比为8:2。泵浦光经过反射镜转向后被透镜聚焦至光电导天线上产生太赫兹辐射,锥形辐射的太赫兹波由一直径25.4 mm、焦距15 mm的聚甲基戊烯(Polymethylpentene, TPX)透镜收集准直为平行光束,随后经一对金膜反射镜反射穿过ICP放电装置后被TPX透镜和掺锡氧化铟(Indium Tin Oxides, ITO)玻璃聚焦和反射。探测光通过时间延迟线,反向传播穿过ITO玻璃与重新聚焦的太赫兹光束共线传播,随后进入电光采样模块检测太赫兹波。

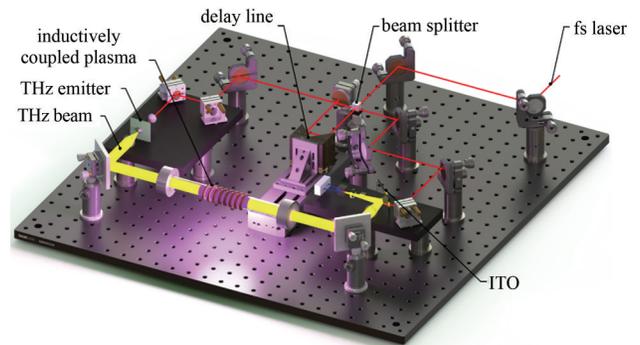


Fig.1 Schematic layout of the THz-TDS system for diagnosis of the electron density of inductively coupled plasma source
图1 用于诊断电感耦合等离子体源电子密度的THz-TDS系统示意图

图2为实验中使用的ICP装置示意图,主要由法兰、真空泵、石英管、放电线圈等部件组成。石英管(长155 mm,直径20 mm)两端安装不锈钢法兰,8匝中空铜线圈天线(长48 mm)围绕在石英管外部。入射和出射窗口为熔融石英窗片(直径35 mm,厚度2 mm)。法兰2连接真空泵组(Pfeiffer, Hicube80),极限真空 $<1 \times 10^{-2}$ Pa。法兰1连接氩气瓶和真空计(Pfeiffer, TPG201),可以将一定量的氩气引入石英管并实时监测气压。射频电源(长春信达, JG-500W)通过匹配网络连接到铜线圈天线,工作频率为13.56 MHz,输出功率为250~400 W。为了防止等离子体运行过程中的热损伤,冷却水和风扇分别对铜线圈天线和石英管进行冷却,水温保持在20 °C,确保等离子体运行稳定。

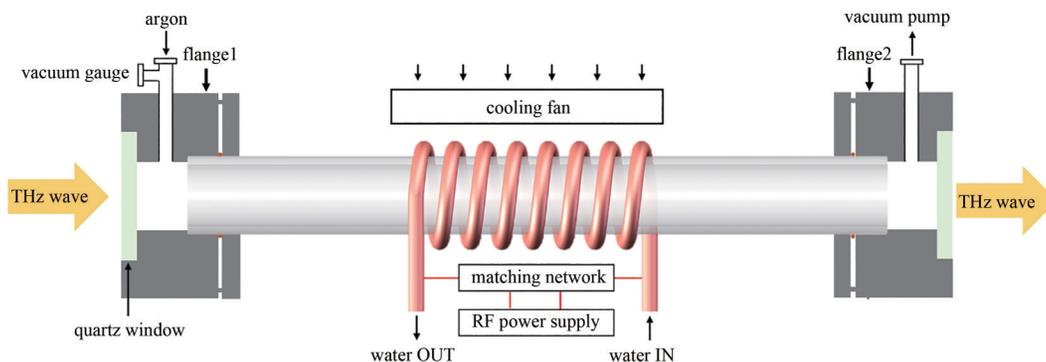


Fig.2 Schematic of the inductively coupled plasma source for THz-TDS measurement
图2 用于THz-TDS测量的电感耦合等离子体源示意图

2 结果与讨论

2.1 理论分析与数据处理

THz-TDS 是一种相干光谱检测技术, 可以同时得到太赫兹波的振幅和相位信息。当太赫兹波通过等离子体时, 由于等离子体的色散, 其相位会发生变化, 变化量与等离子体的折射率 n 有关, 表示为^[9]:

$$n^2 = \frac{1}{2} \left(1 - \frac{\omega_p^2}{\omega^2 + \nu^2} \right) \left[\sqrt{1 + \left(\frac{\omega_p^2}{\omega^2 + \nu^2 - \omega_p^2} \times \frac{\nu}{\omega} \right)^2} + 1 \right] \quad (1)$$

式中: $\omega_p = \sqrt{\frac{e^2 n_e}{m_e \epsilon_0}}$ 为等离子体频率, 由等离子体电子密度 n_e 所决定, e, m_e 和 ϵ_0 分别代表元电荷量、电子质量和真空介电常数; ω 为太赫兹波角频率, ν 为电子碰撞频率。对于高密度等离子体, $n_e \sim (10^{12} \sim 10^{14} \text{ cm}^{-3})$ 。等离子体频率和碰撞频率远小于太赫兹波角频率, 即 $\nu, \omega_p \ll \omega$ 。式(1)被简化为:

$$n = 1 - \frac{\omega_p^2}{2\omega^2} \quad (2)$$

设 ϕ_{ref} 和 ϕ_{pla} 分别代表等离子体关闭和打开时的太赫兹光谱的相位, 则相移可以表示为:

$$\Delta\phi = \phi_{\text{ref}} - \phi_{\text{pla}} = \frac{\omega L}{c} (1 - n) \quad (3)$$

式中: c 为光速, L 为等离子体长度, 将式(2)和 ω_p 代入式(3), 式(3)变为:

$$\Delta\phi = \frac{n_e e^2}{m_e \epsilon_0} \times \frac{L}{2c\omega} \quad (4)$$

由式(4)可知, 相移由电子密度和太赫兹波角频率共同决定。一方面, 从图3中可以看出: 由于等离子体的吸收和散射, 太赫兹波通过等离子体后强度有所衰减。等离子体中太赫兹波的群速度小于光速, 等离子体打开的时域信号比等离子体关闭时的信号有所延迟; 另一方面, 相移的频率依赖性导致相位同步被打破, 造成太赫兹时域波形展宽。如图4所示, 等离子体电子密度越高, 展宽越明显, 该现象类似于超快激光中的啁啾脉冲展宽机制。

为得到电子密度, 使用基于方程(4)所示的函数形式 $\Delta\phi = \frac{A}{\omega} + C_0$ 拟合实验数据, 考虑到相位的周期, 可以通过适当的偏移来消除。因此, 等离子体密度可由式(5)获得:

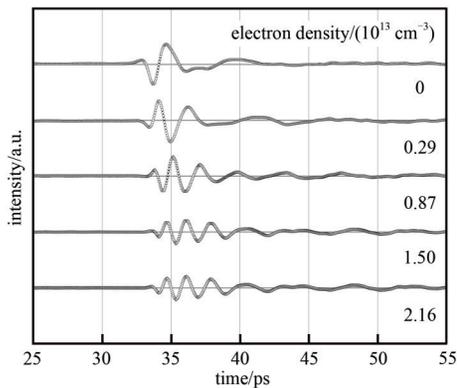


Fig.4 THz-TDS with different electron densities
图4 不同电子密度的太赫兹时域光谱

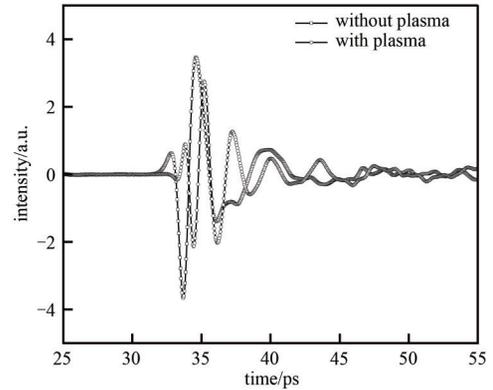


Fig.3 THz-TDS without plasma and with plasma
图3 无等离子体和具有等离子体的太赫兹时域光谱

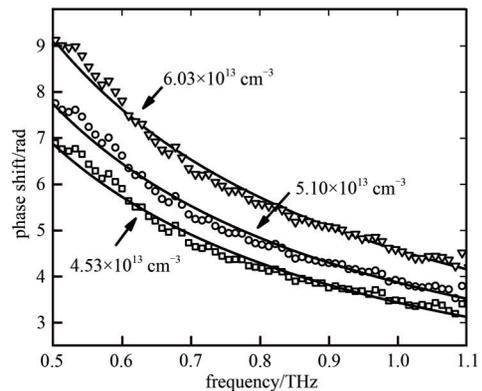


Fig.5 Typical phase shift of THz waves and the electron density calculated from fitting curves
图5 太赫兹波的典型相移和从拟合曲线计算的电子密度

$$n_e = 2 \times \frac{m_e \epsilon_0 c}{e^2 L} A \quad (5)$$

图 5 为通过实验测得的相移得到电子密度的过程，参数 A 利用上述函数对数据进行拟合得到，将 A 代入方程 (5) 即可得到电子密度。

2.2 实验与计算结果

实验中射频功率设置为 250 W, 300 W, 350 W 和 400 W，氩气压强在 37~99 Pa 之间。太赫兹波时域信号长度为 100 ps，对应的频谱分辨力可以达到 10 GHz。需要说明的是，当氩气压强或射频功率发生变化时，等离子体长度会发生微小变化。为方便起见，本文中等离子体长度都设置为 90 mm。如图 6~7 所示，电子密度随着射频功率增加而单调递增，这主要是因为电子从射频电场中获取到了更多的能量，电子碰撞次数增加导致放电更加充分，从而使电子密度增加；同时还可以看出，随着氩气压强增加，电子密度也显著增加，这主要归因于气压的增加造成电子平均自由程减小，与中性粒子碰撞频率增加，造成等离子体电离率增加，从而产生了更多电子。典型电子密度范围为 $10^{13} \sim 10^{14} \text{ cm}^{-3}$ ，图中显示的误差棒通过 3 次测量取平均得到。

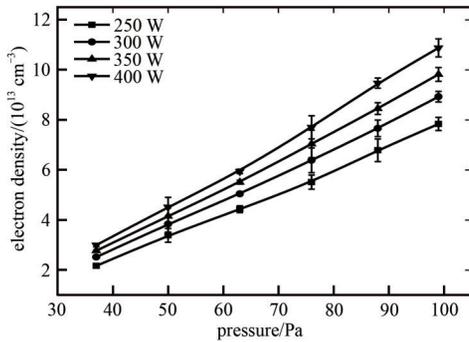


Fig.6 The measured electron density as a function of the argon pressure under different RF powers
图 6 不同功率下的电子密度随氩气压强变化趋势

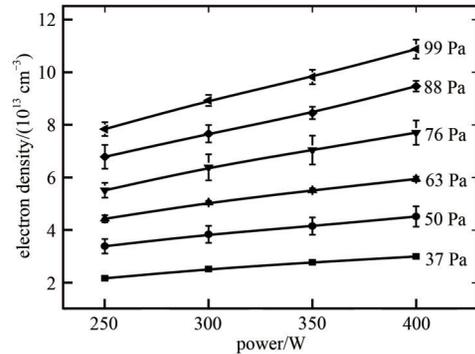


Fig.7 The measured electron density as a function of RF power under different argon pressures
图 7 不同气压条件下,电子密度随射频功率变化趋势

此外，为了系统地检验 THz-TDS 测量得到电子密度的可靠性，在相同的实验输入功率和气压条件下进行基于 COMSOL Multiphysics 流体数值计算研究。COMSOL Multiphysics 是一种广泛用于科学和工程问题建模和仿真的开发环境，目前已开发出功能强大的等离子体计算模块，其可靠性得到了充分的理论和实验验证^[10-11]，已成为科学界和工业界广受欢迎的等离子体计算仿真工具。图 8 是计算中使用的二维轴对称 ICP 模型，模型所有参数包括反应气体类型、气压、射频功率、放电室材料以及几何构型都与实验参数保持一致。面对等离子体的壁，会发生速度滑移、气体加热和温度跳跃等效应，因此将壁设置为零电位，并将模拟区域的外部边界设置为磁绝缘。

通过求解一对漂移扩散方程和忽略流体运动引起的电子对流来计算电子密度，简化为：

$$\begin{cases} \frac{\partial}{\partial t} (n_e) + \nabla \cdot \Gamma_e = R_e \\ \frac{\partial}{\partial t} (n_e) + \nabla \cdot \Gamma_e + \mathbf{E} \cdot \Gamma_e = R_e \end{cases} \quad (6)$$

式中： n_e 和 n_e 分别为电子密度和电子能量密度， \mathbf{E} 为电场强度，电子产生项 R_e 由等离子体化学速率系数确定，非弹性碰撞引起的电子能量损失 R_e 通过对所有反应的碰撞能量损失求和获得，这里假设电子能量服从麦克斯韦分布。 Γ_e 和 Γ_e 表示为：

$$\begin{cases} \Gamma_e = -(\mu_e \cdot \mathbf{E})n_e - D_e \cdot \nabla n_e \\ \Gamma_e = -(\mu_e \cdot \mathbf{E})n_e - D_e \cdot \nabla n_e \end{cases} \quad (7)$$

式中： D_e 为电子扩散速率， $D_e = \mu_e T_e$ ， T_e 为电子温度； D_e 为能量扩散速率， $D_e = \mu_e T_e$ ； μ_e 为电子迁移率； μ_e 为能量

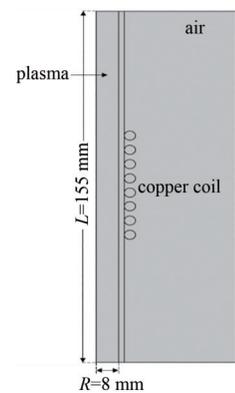


Fig.8 Schematic of the ICP chamber used in the simulation
图 8 模拟中使用的 ICP 源结构示意图

迁移率, $\mu_e = \left(\frac{5}{3}\right)\mu_e$ 。

等离子体中的物质包括激发态的氩、中性物质和离子(统称为非电子物质)的质量分数, 可表示为:

$$\rho \frac{\partial}{\partial t} w_k + \rho(\mathbf{u} \cdot \nabla) w_k = \nabla \cdot \mathbf{j}_k + R_k \quad (8)$$

式中: 下标 k 代表不同的物质; w 和 j 分别代表质量分数和扩散通量; ρ 为平均密度, \mathbf{u} 为质量平均流体速度矢量; R 为物种生成速率系数。

泊松方程用于描述等离子体中的静电场。氩气作为放电气体, 其在等离子体中的化学反应机理由 3 个关键物质和 7 个反应组成, 见表 1。

表 1 模型中所涉及的碰撞与反应
Table 1 Collisions and reactions in the model

collision type	response equation	ε/eV
elastic collision	$e+Ar \Rightarrow Ar+e$	-
ground state excitation	$e+Ar \Rightarrow Ars+e$	-
superplastic collision	$e+Ars \Rightarrow Ar+e$	11.56
ground state ionization	$e+Ar \Rightarrow Ar^++2e$	-11.56
step-wise ionization	$e+Ars \Rightarrow Ar^++2e$	15.6
metastable pooling	$Ars+Ars \Rightarrow Ar+Ar^++e$	4.14
two-body quenching	$Ars+Ar \Rightarrow Ar+Ar$	-

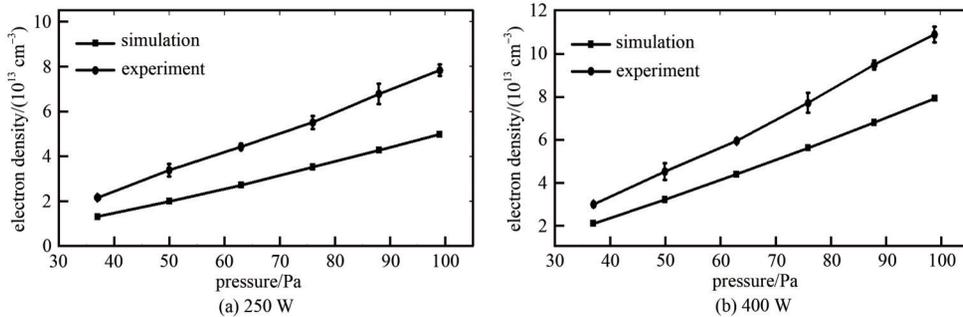


Fig.9 Variation of the electron density as the change of argon pressure at different RF input powers
图 9 不同射频输入功率下电子密度随氩气气压的变化趋势

为便于与实验结果进行比较, 对计算结果进行空间平均处理。图 9 为 THz-TDS 实验数据和数值计算的在 50 W 和 400 W 不同射频输入功率下电子密度随氩气压强的变化情况, 两者变化趋势一致, 但存在偏差。进一步地对本实验中实验测量值和数值计算值之间的偏差度 $|n_{\text{exp}} - n_{\text{sim}}|/n_{\text{exp}}$ 进行统计分析, 如图 10 所示, 实验测量与数值计算值之间的偏差度与电子密度无关, 两者偏差度 $\sim (30 \pm 5)\%$ 。推测实际放电中电子能量分布函数偏离模型中所假定的 Maxwell 分布, 以及实验测量区域和数值空间平均处理区域不能准确重合是造成该偏差的主要原因。总体上, 计算结果与实验数据吻合程度较高, 从数值计算的层面上进一步验证了利用 THz-TDS 诊断等离子体电子密度的可靠性, 这进一步加强了 THz-TDS 协调激光汤姆逊散射原位诊断等离子体密度实验研究的结论。尤其是太赫兹波光子能量低、抗干扰、相干探测等特性, 对于朗缪尔探针等传统方法在高密度等离子体中失效、激光汤姆逊散射在电负性等离子体偏差较大等极端情况, THz-TDS 技术具有先天优势, 发展前景巨大。

3 结论

本文采用 THz-TDS 诊断 ICP H 模放电等离子体中的电子密度, 典型电子密度为 10^{13} cm^{-3} 。同时, 采用基于

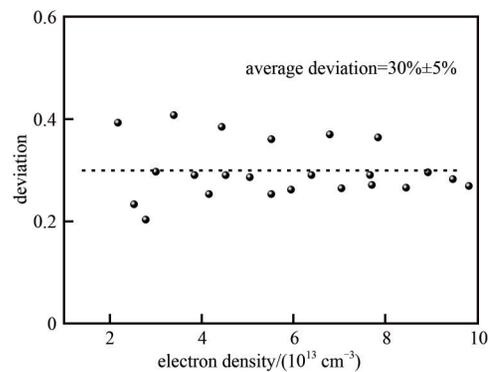


Fig.10 Statistical analysis of the deviation between experimental measurement and numerical simulation
图 10 实验测量和数值计算偏差统计分析

COMSOL Multiphysics 的流体数值模型计算在相同的实验条件下的电子密度。两者对比结果显示，实验数据与数值计算结果定量符合较好，电子密度随氩气压力的变化趋势一致，其偏差在合理范围(<30%)内。从数值计算的层面上，为 THz-TDS 诊断等离子体电子密度的可靠性提供了数据支持，证实了 THz-TDS 在等离子体诊断领域中存在巨大的发展潜力。

致谢：感谢大连理工大学超算中心 COMSOL 多物理场耦合数值计算平台的支持。

参考文献：

- [1] 袁方园. 利用朗缪尔双探针诊断电弧离子镀等离子体参数[D]. 大连:大连理工大学, 2009. (YUAN Fangyuan. Plasma parameter diagnosis on arc ion plating by Langmuir probe[D]. Dalian, Liaoning, China: Dalian University of Technology, 2009.)
- [2] 孙殿平. 等离子体参量的发射光谱诊断的研究[J]. 物理实验, 2019, 39(9):1-9. (SUN Dianping. Study on the diagnosis of plasma parameters by emission spectrum[J]. Physics Experimentation, 2019, 39(9):1-9.) doi:10.19655/j.cnki.1005-4642.2019.09.001.
- [3] 刘世贵, 方吉汉, 范威, 等. 大气压电子束等离子体密度诊断实验[J]. 太赫兹科学与电子信息学报, 2020, 18(4):639-642. (LIU Shigui, FANG Jihan, FANG Wei, et al. Microwave diagnose on electron density of electron-beam-generated air plasma[J]. Journal of Terahertz Science and Electronic Information Technology, 2020, 18(4):639-642.) doi:10.1180.5/TKYDA2018233.
- [4] WANG Yong, LI Cong, SHI Jieli, et al. Measurement of electron density and electron temperature of a cascaded arc plasma using laser Thomson scattering compared to an optical emission spectroscopic approach[J]. Plasma Science Technology, 2017, 19(11): 115403. doi:10.1088/2058-6272/aa861d.
- [5] KOLNER B H, BUCKLES R A, CONKLIN P M, et al. Plasma characterization with terahertz pulses[J]. IEEE Journal of Selected Topics in Quantum Electronics, 2008, 14(2):505-512. doi:10.1109/JSTQE.2007.913395.
- [6] ANDO A, KUROSE T, REYMOND V, et al. Electron density measurement of inductively coupled plasmas by Terahertz Time-Domain Spectroscopy (THz-TDS)[J]. Journal of Applied Physics, 2011, 110(7):073303. doi:10.1063/1.3633488.
- [7] ZHENG Zhigang, HUANG Yindong, GUO Quan, et al. Filament characterization via resonance absorption of terahertz wave[J]. Physics of Plasmas, 2017, 24(10):103303-1-10. doi:10.1063/1.5004551.
- [8] ZHAO Yarui, WANG Yong, SHI Jieli, et al. Comparison of Terahertz time domain spectroscopy and laser Thomson scattering for electron density measurements in inductively coupled plasma discharges[J]. Journal of Instrumentation, 2019, 14(12):C12019. doi:10.1088/1748-0221/14/12/C12019.
- [9] 杨楠, 杜海伟. THz 时域光谱诊断激光等离子体密度和碰撞频率[J]. 红外与毫米波学报, 2014, 33(3):237-240. (YANG Nan, DU Haiwei. Diagnosis plasma density and collisions by terahertz time-domain spectroscopy[J]. Journal of Infrared and Millimeter Waves, 2014, 33(3):237-240.) doi:10.3724/SP.J.1010.2014.00237.
- [10] BREZMES A O, BREITKOPF C J V. Fast and reliable simulations of argon inductively coupled plasma using COMSOL[J]. Vacuum, 2015, 116(1):65-72. doi:10.1016/j.vacuum.2015.03.002.
- [11] 贾瑞宝, 罗天勇, 陈伦江. 基于 COMSOL 的感应耦合等离子体炬多物理场研究[J]. 核聚变与等离子体物理, 2018, 38(4):473-481. (JIA Ruibao, LUO Tianyong, CHEN Lunjiang. Multi-physics simulation of inductively coupled plasma torch based on COMSOL[J]. Nuclear Fusion and Plasma Physics, 2018, 38(4):473-481.) doi:10.16568/j.0254-6086.201804015.

作者简介：

赵亚锐(1994-), 男, 在读博士研究生, 研究方向为太赫兹光谱诊断. email:zhaoyarui@mail.dlut.edu.cn.

冯春雷(1986-), 男, 博士, 高级工程师, 研究方向为激光光谱诊断.

崔紫宵(1998-), 女, 在读硕士研究生, 研究方向为激光等离子体诊断.

丁洪斌(1963-), 男, 博士, 教授, 研究方向为激光光谱诊断.

吴鼎(1990-), 男, 博士, 副教授, 研究方向为激光光谱诊断.