

## КРИСТАЛЛИЗАЦИЯ ПЫЛЕВОЙ ПЛАЗМЫ В ПОЛОЖИТЕЛЬНОМ СТОЛБЕ ТЛЕЮЩЕГО РАЗРЯДА

*В.Е.Форттов, А.П.Нефедов<sup>1)</sup>, В.М.Торчинский, В.И.Молотков,  
А.Г.Храпак, О.Ф.Петров, К.Ф.Волыхин*

*Научно-исследовательский центр теплофизики импульсных воздействий РАН  
127412 Москва, Россия*

Поступила в редакцию 14 июня 1996 г.

Наблюдалось образование макроскопических упорядоченных структур в стоячих стратах стационарного тлеющего разряда в Ne. Кулоновский квазикристалл был образован сферическими стеклянными частицами диаметра 50–63 мкм и зарядом  $Z_p \sim 7 \cdot 10^5 e$ . Расстояние между частицами было около 300 мкм. Это соответствует параметру неидеальности  $\Gamma \sim 5 \cdot 10^4$ , что приводит к кристаллизации в модели Юкавы. Обсуждаются причины, приводящие к образованию квазикристалла в стратах.

PACS: 52.25.-b, 52.30.-q, 64.70.-p

Пылевая плазма представляет собой низкотемпературную плазму, содержащую мелкодисперсные жидкие или твердые частицы. Иногда такую плазму называют азрозольной или плазмой с конденсированной дисперсной фазой (КДФ). Наличие конденсированных частиц может существенно сдвигать ионизационное равновесие в плазме и приводить к целому ряду новых эффектов. В последние годы повышенный интерес к изучению свойств пылевой плазмы связан с широким использованием технологий плазменного напыления и травления в микроэлектронике и при производстве тонких пленок [1, 2]. Наличие частиц в плазме не только приводит к загрязнению поверхности полупроводникового элемента и тем самым к увеличению выхода дефектных элементов, но и возмущает плазму, зачастую непредсказуемым образом. Уменьшение или предотвращение этих негативных эффектов невозможно без понимания процессов образования и роста конденсированных частиц в газоразрядной плазме, механизма их переноса и влияния на свойства разряда.

Для поверхностной обработки обычно используется плазма радиочастотного газового разряда низкого давления [3]. Степень ионизации такой плазмы мала ( $\sim 10^{-7}$ ), энергия электронов составляет несколько эВ, а энергия ионов близка к тепловой энергии атомов ( $\approx 0.03$  эВ). На нейтральную неэмиттирующую частицу, попавшую в такую плазму, направлены потоки всех присутствующих в плазме частиц, в том числе электронов и ионов. Принято считать, что попавшие на поверхность частицы электроны полностью поглощаются, а подлетающие к поверхности частицы ионы вырывают электроны и рекомбинируют. Вследствие большой разницы в массах электрона и иона поток электронов на несколько порядков превышает поток ионов, и частица начинает заряжаться отрицательно. Появляющийся у частицы отрицательный электростатический потенциал приводит к отталкиванию электронов и притяжению ионов. Заряд частицы меняется до тех пор, пока не сравняются потоки электронов и ионов на частицу. Типичная величина стационарного заряда частицы микронного

<sup>1)</sup>e-mail: nefedov@hedric.msk.su

размера лежит в пределах от  $10^3$  до  $10^5$  зарядов электрона. Соответственно, отрицательный потенциал приобретают стенки разрядной камеры и электроды. Все это позволяет при определенных условиях скомпенсировать влияние гравитации и приводит к левитации (зависанию) частиц над нижним электродом или дном разрядной камеры. На этом эффекте основаны методы удержания пылевой плазмы в специальных ловушках, позволяющие уменьшить загрязнение обрабатываемых поверхностей.

Энергия парного взаимодействия между заряженными частицами пропорциональна произведению зарядов этих частиц. В пылевой плазме, где заряд частиц  $Z_p$  велик, неидеальность по взаимодействию между частицами может наступать значительно раньше неидеальности электрон-ионной подсистемы, несмотря на то, что концентрация частиц обычно мала по сравнению с концентрациями электронов и ионов. Параметр неидеальности  $\Gamma$  системы заряженных частиц обычно определяется отношением потенциальной энергии кулоновского взаимодействия к кинетической энергии теплового движения

$$\Gamma = \frac{Z_p^2 e^2}{aT}, \quad (1)$$

где  $T$  – температура частиц, а

$$a = \left( \frac{3}{4\pi N_p} \right)^{1/3} \quad (2)$$

– радиус сферы, приходящейся на одну частицу (радиус Вигнера – Зейца). Если заряд частицы  $Z_p$  положить равным  $10^3$ , а их концентрацию  $N_p$  равной  $10^5$ , то действительно  $\Gamma$  оказывается порядка  $10^2$ , что свидетельствует о сильной неидеальности пылевой плазмы в этих условиях. Из простейшей и наиболее изученной модели однокомпонентной плазмы известно, что при  $\Gamma > 1$  в системе появляется ближний порядок, а при  $\Gamma \cong 170$  однокомпонентная плазма кристаллизуется [4].

Условия возможной кристаллизации пылевой плазмы сформулировал Икези [5]. Однако прошло почти десять лет, прежде чем пылевой кристалл удалось наблюдать в плазме высокочастотного разряда. Это произошло почти одновременно в четырех лабораториях: на Тайване [6], в Германии [7,8] и Японии [9]. В последнее время упорядоченные структуры макрочастиц наблюдались в термической плазме при температуре около 1700 K [10].

Плазменный кристалл в радиочастотном разряде образуется вблизи нижнего электрода на границе прикатодной области. Он может иметь различную кристаллическую структуру с постоянной решетки порядка долей миллиметра, что позволяет наблюдать его практически невооруженным глазом. Плазменные кристаллы обладают целым рядом уникальных свойств, делающих их незаметным инструментом как при исследовании свойств сильно неидеальной плазмы, так и при исследовании фундаментальных свойств кристаллов.

До сих пор все попытки получить плазменный кристалл не в высокочастотном разряде, а в стационарном тлеющем разряде были неудачны. Это, по-видимому, связано с тем, что несмотря на рост напряженности электрического поля вблизи катода, уменьшение заряда частицы вследствие падения концентрации электронов не позволяет электростатическим силам полностью скомпенсировать гравитационные. Лишь высокочастотное поле, периодически

забрасывающее электроны глубоко в прикатодную область, приводит к компенсации этих сил и левитации пылевых частиц. Тем не менее, в настоящей работе обнаружено образование упорядоченных квазикристаллических структур в стационарном тлеющем разряде. Однако кристаллизация происходит не в прикатодной области, а в стоячих стратах.

Тлеющий разряд создавался в цилиндрической стеклянной газоразрядной трубке с холодными электродами. Внутренний диаметр трубки составлял 3 см, расстояние между электродами 40 см. Схема установки приведена на рис.1. Сила разрядного тока изменялась от 1 до 10 мА, давление неона от 0.4 до 2 торр. В этом диапазоне существовали режимы разряда с естественными стоячими стратами.

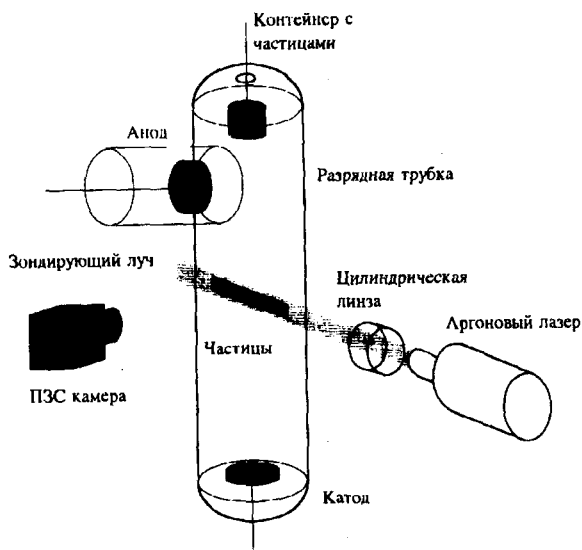


Рис.1. Схема экспериментальной установки

В плазму положительного столба разряда вводились частицы из боросиликатного стекла ( $\rho = 2.3 \text{ г/см}^3$ ), представляющие собой полые тонкостенные сферы диаметром 50–63 мкм. Толщина стенки составляла приблизительно 5 мкм, при этом насыпная плотность частиц была близка к  $0.9 \text{ г/см}^3$ . Частицы размещались в цилиндрическом контейнере, дно которого было выполнено из металлической сетки с шагом 100 мкм. При встряхивании контейнера частицы падали и попадали в положительный столб. Визуализация частиц осуществлялась с помощью подсветки в горизонтальной или вертикальной плоскостях зондирующим лазерным лучом. Луч от аргонного лазера формировался цилиндрической линзой в плоский сходящийся пучок с толщиной перетяжки в центре разрядной трубки 150 мкм и шириной 20 мм. Горизонтальный зондирующий пучок мог перемещаться по высоте трубки, а вертикальный — как по высоте, так и по радиусу. Отраженный свет наблюдался с помощью ПЗС-камеры в случае горизонтального пучка под углом  $45^\circ$ , а в случае вертикального пучка — под углом  $90^\circ$ , и записывался на видеомэгнитофон.

При наличии в положительном столбе разряда стоячих или слабо колеблющихся страт в их светящихся частях наблюдалось зависание заряженных макроскопических частиц, образующих упорядоченные квазикристаллические

структуры, размеры и форма которых зависят от параметров разряда. Процесс формирования структуры выглядит следующим образом: после встряхивания контейнера частицы проскакивают положение равновесия, а затем в течение нескольких секунд "всплывают" и выстраиваются в упорядоченную структуру, сохраняющуюся сколь угодно долго при неизменных параметрах разряда. При этом отдельные частицы могут двигаться вверх по направлению к аноду по периферии страты. Заметим, что наблюдалось одновременное существование упорядоченных структур в нескольких соседних стратах. При флуктуациях страты облако частиц колеблется вместе со светящейся областью страты. При сильных колебаниях отдельные частицы могут выпадать из структуры. На рис.2 и 3 приведены примеры структур, наблюдавшихся в вертикальной и горизонтальной плоскостях. При сканировании горизонтальным пучком по высоте наблюдалось около десяти горизонтальных слоев частиц. Расстояния между слоями лежали в диапазоне 260–320 мкм, а расстояния между частицами в горизонтальной плоскости составляли 350–600 мкм.

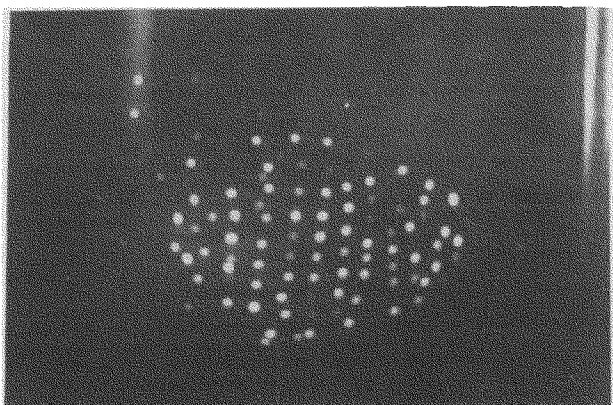


Рис.2. Фотография упорядоченной структуры в страте в вертикальной плоскости при разрядном токе 1.1 мА и давлении неона 0.4 торр



Рис.3. Фотография упорядоченной структуры в страте в горизонтальной плоскости при разрядном токе 0.9 мА и давлении неона 1.0 торр

Основные свойства страт в разряде низкого давления хорошо изучены [11–14]. В условиях неупругого баланса энергии электронов в инертных газах возникают естественные периодические структуры с характерным масштабом  $\lambda_1 \approx \epsilon_1 / eE_0 \approx 4 - 5 \text{ см}$  ( $\epsilon_1$  – первый потенциал возбуждения, равный 16.6 эВ

для неона, а  $E_0$  – среднее по длине страты электрическое поле). В голове страты, ярко светящейся области сильного поля, занимающей приблизительно треть страты, плотность электронов возрастает на порядок. Затем ионизация прекращается, поскольку поле практически исчезает, и электроны, вследствие диффузии к стенкам, гибнут. Плотность их постепенно падает вплоть до головы следующей страты. Темная область в несколько раз длиннее светлой. Постоянство тока по длине разряда приводит к тому, что с падением концентрации начинается рост поля, и все повторяется в следующей страте. Страты имеют существенно двумерный характер. Разность потенциалов центр – стенка в голове страты достигает 20–30 В, причем изменение потенциала происходит в узком пристеночном слое толщиной 2–3 мм [13,14]. В области сильного поля у функции распределения электронов по энергиям появляется вторичный максимум, сдвигающийся в область больших энергий при движении по страте и исчезающий в конце страты, достигнув энергии возбуждения  $\epsilon_1$ .

В голове страты резко возрастает не только продольное электрическое поле, но и заряд макроскопических частиц. В этом проще всего убедиться, приравняв плавающий потенциал частицы  $\varphi_p$  потенциалу стенки  $\varphi_w \cong 30$  В. Учитывая, что  $Z_p \cong \varphi_p R_p / e$  ( $R_p$  – радиус частицы), получаем  $Z_p \cong 7 \cdot 10^5$ . Для того чтобы удержать от падения частицу массы  $M_p$ , электрическая сила  $Z_p e E$  должна уравнять гравитационную  $M_p g$ , откуда

$$E_m \cong \frac{M_p g}{Z_p e}. \quad (3)$$

Масса частиц диаметром 63 мкм, с толщиной стенки 5 мкм равна  $10^{-7}$  г. Это дает  $E_m \cong 88$  В/см, что в 3–4 раза превышает поля, обычно наблюдаемые в голове страты. Однако это несоответствие легко объяснить сепарацией частиц по толщине стенок, а следовательно, и по массе, имеющей место прямо в разряде, – захватываются частицы с минимальным значением параметра  $M_p / Z_p$ , прежде всего тонкостенные.

Большая величина  $Z_p$  приводит к сильному кулоновскому отталкиванию между частицами и неидеальности системы. При среднем расстоянии между частицами  $a = 300$  мкм и температуре  $T = 300$  К параметр неидеальности  $\Gamma \sim 10^8$ . Следует, однако, учесть, что частицы экранируются электронами и ионами плазмы, концентрация которых в голове страты  $\sim 10^9$  см $^{-3}$ . Радиус Дебая  $r_D \cong 40$  мкм ( $a \cong 10 r_D$ ), что свидетельствует о сильной экранировке. Эффект экранировки учитывается в модели Юкава [15], где вводится потенциал взаимодействия типа Дебая – Хюккеля:

$$\Phi_D(r) = \frac{Z_p e}{r} e^{-r/r_D}. \quad (4)$$

Численные расчеты в рамках модели Юкава показывают, что для кристаллизации требуется  $\Gamma = 4.8 \cdot 10^4$  при  $a/r_D = 10$ . Величина  $\Gamma \sim 5 \cdot 10^4$ , характерная для условий наших экспериментов, находится в хорошем соответствии с результатами этих расчетов. Неполная регулярность наблюдаемых структур, по-видимому, связана с недостаточной монодисперсностью частиц по массам и зарядам. Удержание комплекса от развала в радиальном направлении обеспечивается наличием вблизи стенки сильного радиального электрического поля, достигающего величины  $\sim 10^2$  В/см. Однако внутри самого комплекса это поле малó и слабо влияет на параметры упорядоченной структуры.

В заключение отметим, что нами обнаружено образование упорядоченных структур заряженных макроскопических частиц большого размера и веса в стратах тлеющего разряда низкого давления. Удержание комплекса обеспечивается большим зарядом частиц и наличием сильных осевого и радиального градиентов потенциала в голове страт.

Авторы выражают благодарность А.М.Липаеву и А.В.Чернышеву за помощь в проведении эксперимента, в также J.Goree и В.А.Синельникову за стимулирующие дискуссии. Работа выполнена при поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (грант 95-02-0645) и INTAS-RFBR (grant 1196).

- 
1. A.Bouchoule and L.Boufendi, *Plasma Sources Sci. Technol.* **3**, 292 (1994).
  2. J.Goree, *Plasma Sources Sci. Technol.* **3**, 400 (1994).
  3. Ю.П.Райзер, М.Н.Шнейдер, Н.А.Яценко, *Высокочастотный емкостный разряд*, М.: Наука, 1995.
  4. S.Ichimar, *Rev. Mod. Phys.* **54**, 1017 (1982).
  5. H.Kezi, *Phys. Fluids* **29**, 1764 (1986).
  6. J.H.Chu and L.I., *Phys. Rev. Lett.* **72**, 4009 (1994).
  7. H.Thomas, G.E.Morfill, V.Demmel et al., *Phys. Rev. Lett.* **73**, 652 (1994).
  8. A.Melzer, T.Trottenberg, and A.Piel, *Phys. Lett. A* **191**, 301 (1994).
  9. Y.Nayashi and K.Tachibana, *Jpn. J. Appl. Phys.* **33**, L804 (1994).
  10. V.E.Fortov, A.P.Nefedov, O.F.Petrov et al., *Письма в ЖЭТФ* **63**, 176 (1996).
  11. Ю.П.Райзер, *Физика газового разряда*, М.: Наука, 1987.
  12. А.В.Недоспасов, В.Д.Хаит, *Основы физики процессов в устройствах с низкотемпературной плазмой*, М.: Энергоатомиздат, 1991.
  13. Ю.Б.Голубовский, С.У.Нисимов, И.Э.Сулейменов. *ЖТФ* **64**, 54 (1994).
  14. Ю.Б.Голубовский, С.У.Нисимов, *ЖТФ* **65**, 46 (1995).
  15. M.O.Robbins, K.Kremer, and G.S.Grest, *J. Chem. Phys.* **88**, 3286 (1988).