УДК:539.141;537.868

## ОПРЕДЕЛЕНИЕ ПАРАМЕТРОВ СВЧ ПЛАЗМЫ В ПОЛЕ $TE_{10}$ ВОЛНЫ, ВОЗБУЖДАЕМОЙ МАГНЕТРОНОМ С ЧАСТОТОЙ 2,45 ГГЦ

О.В. Пелипасов<sup>1,2,3</sup>, С.Б. Заякина<sup>4</sup>, А.Ю. Максимов<sup>3</sup>, А.Н. Путьмаков<sup>1,3</sup>

<sup>1</sup>Институт автоматики и электрометрии СО РАН, пр. академика Коптюга,1, Новосибирск, Россия <sup>2</sup>Новосибирский Государственный Технический Университет, пр. К.Маркса, 20, Новосибирск, Россия <sup>3</sup>ООО «ВМК − Оптоэлектроника», пр. академика Коптюга, 1, Новосибирск, Россия <sup>4</sup>Институт геологии и минералогии им. В.С.Соболева СО РАН, пр. академика Коптюга, 3, Новосибирск, Россия E-mail: pelipasov@vmk.ru

#### Аннотация

Этой статье обсуждается результаты определения атома и иона температуры и плотности электронов в микроволновой плазме возбуждаемой магнетроном на частоте 2,45 ГГц. Полученные параметры от источника возбуждения сравниваются с характеристиками других источников микроволновой плазмы и ICP.

**Ключевые слова:** СВЧ плазма, магнетрон, источник возбуждения спектров, индуктивно-связанная плазма

#### Ввеление

Разработка новых источников возбуждения спектров является очень важной задачей в современном спектральном анализе. Авторами было предложено использовать СВЧ плазму для анализа растворов. Такая плазма имеет ряд существенных преимуществ перед ІСР и в ряде задач вполне может заменить индуктивносвязанную плазму [1].

В качестве источника СВЧ поля использовался магнетрон ОМ75S компании Samsung Electronics, работающий на частоте 2450 МГц. Номинальная мощность магнетрона составляет 750 Вт. Так как магнетрон используется для долговременной работы при высоких уровнях мощности ~ 700–1500 Вт, были предприняты меры для улучшения его охлаждения. Питание магнетрона осуществлялось от модернизированного генератора «Везувий-3» [2].

Для передачи высокочастотной энергии магнетрона в плазму использовался прямоугольный волновод, в котором возбуждается  $TE_{10}$  мода. В максимуме электрического поля расположена разрядная камера, представляющая собой кварцевую трубку, внутри которой находится плазмообразующий газ — аргон.

Газ в разрядной камере поглощает СВЧ энергию и ионизируется, образуя плазменный разряд. Эффективное поглощение микроволновой энергии плазмой происходит в максимуме электрического поля установившейся моды  $TE_{10}$ . СВЧ энергия в основном поглощается свободными электронами, которые впо

следствии передают энергию атомам и молекулам, с помощью упругих столкновений (тяжелые частицы нагреваются) и через неупругие столкновения (например, возбуждение, ионизация и диссоциация) (рис.1) [3].

Для увеличения плотности энергии вблизи разрядной камеры и для согласования нагрузки на мощность ~ 900 Вт, применена толстая резонансная диафрагма, являющаяся концентратором энергии. Настройка и согласование коаксиально-волнового перехода осуществляется либо с помощью подвижного винтапоршня, либо с помощью торцевых стенок волновода по максимуму электрического поля вблизи оси симметрии кварцевой трубки.

Регистрация спектров плазмы осуществлялась с помощью спектрометра высокого разрешения «Экспресс» [4], оснащенного системой регистрации спектров МАЭС [5].

Изображение плазмы фокусировалось на входную щель спектрометра с помощью однолинзовой осветительной схемы в размере 1:1. Плазма представляет собой тороидальную структуру длинной около 40 мм с внутренним и наружным диаметрами 1-2 мм, 3-4 мм соответственно.

Для оптимизации передачи электромагнитной энергии в разряд и увеличения температуры плазмы необходимо иметь представления о ее свойствах, таких как температура и плотность свободных электронов, температура тяжелых частиц, наличие локального термодинамического равновесия (ЛТР).

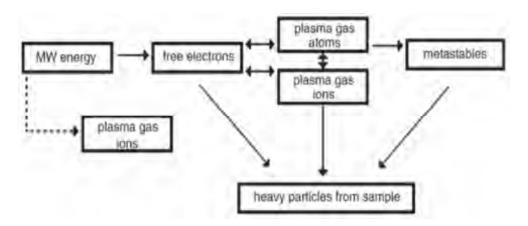


Рис. 1. Схема передачи СВЧ энергии в плазму [3].

На рисунке 2 представлен зарегистрированный спектр СВЧ плазмы, в котором содержатся спектральные линии водорода, атомарные и ионные линии железа, полосы ОН электронного перехода  $A^2 \sum^+ - X^2 \Pi$  [6], позволяющие определить необходимые параметры. Спектр зарегистрирован при рабочей мощно-

сти магнетрона 1 кВт. Высота входной щели спектрометра равна 1 мм. Базовая экспозиция составляла 500 мс. Водный раствор вводился непосредственно в плазму с помощью распылителя Мейнхарда со скоростью 0,02 мл/мин.

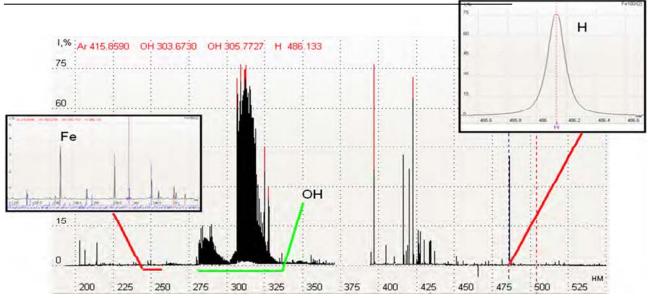


Рис. 2. Зарегистрированный анализатором МАЭС спектр СВЧ плазмы.

### 1. Определение плотности электронов в плазме

Уширение излучаемых плазмой спектральных линий вследствие эффектов давления описываются общим законом  $\Delta \omega = C/r^n$  с различными значениями п для разных типов взаимодействия. Случаи n=2 и n=4 (линейный и квадратичный Штарк-эффект) обуслов-

лены зарядами соседних ионов и электронов, действующих на атомы [7].

Плотность электронов  $n_e$  можно определить из (половины) полуширины линии  $H_{\beta}$ , пользуясь описанной в [7] методикой. Предполагается, что плотность электронов слабо зависит от температуры.

По данным работы [8] концентрацию электронов можно определить, пользуясь выражением для линии  $H_{\beta} = 486,13748$  нм [8]:

$$n_e = 10^{16.578} \left( \Delta \lambda (H_{\beta}) \right)^{1.478 - 0.144 Log \left( \Delta \lambda (H_{\beta}) \right)} T_e^{-0.1265}$$

Формула справедлива для интервала температур  $T_e$  5000-20000 К и концентрации  $n_e$  от 3,16 1014 до 3,16 1016 см<sup>-3</sup> и дает ошибку 5%.

На рисунке 3 приведен фрагмент спектра, зарегистрированного анализатором МАЭС,

содержащий профиль спектральной линии  $H_{\beta}$ . По данным [9] электронная температура для СВЧ плазмы, находящейся в различных конфигурациях электрического поля, меняется в диапазоне от 18000 до 21000 К.

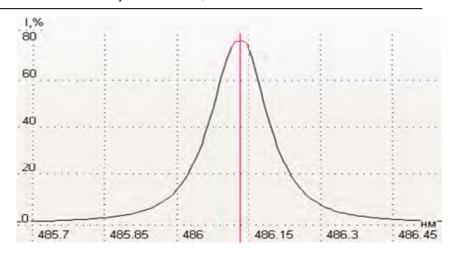


Рис. 3. Зарегистрированный анализатором МАЭС профиль линии  $H_{\beta}$ . В качестве источника возбуждения использован СВЧ плазмотрон с введенным раствором воды.

Измеренная из спектра водного раствора полуширина линии  $H_{\beta}$  составляет 0,12 нм. Результаты расчетов для данной полуширины (табл.1) показывают, что концентрация электронов при изменении электронной температуры меняется незначительно.

Таблица 1. Рассчитанные концентрации электронов в плазме для  $H_{\beta} = 0,12$  нм с добавлением воды

$T_{e}$ , $10^{3}$ K	n <sub>e</sub> , cm <sup>-3</sup>
4	5,01 1014
6	$4,75 \ 10^{14}$
18	$4,11\ 10^{14}$
20	$4,08\ 10^{14}$

Состав плазмы существенно влияет на концентрацию электронов. При попадании в плазму различных аэрозолей возможно, как повышение концентрации так ее и понижение (таблица 2).

Более точное определение концентрации электронов основано на сравнении измеренного контура линии  $H_{\beta}$ , и рассчитанных Гримом, Колбом и Шеном [10].

Таблица 2. Влияние химического состава плазмы на концентрацию электронов

Состав плазмы	n <sub>e</sub> , cm <sup>-3</sup>
Без ввода образца	3,25 1014
Дистиллированная вода	$4,00\ 10^{14}$
Р-р железа 100 ррт	$1,48\ 10^{15}$

# 2. Определение температуры атомов или ионов по относительной интенсивности спектральных линий одной степени ионизации

В модели ЛТР предполагается, что главную роль в процессах в плазме играют столкновения частиц между собой. В результате многократных столкновений и обмена энергией между частицами устанавливается некоторое статическое распределение всех частиц плазмы по энергиям. Причем столкновения происходят настолько часто, что при любом изменении условий в плазме практически мгновенно восстанавливается соответствующее распределение. Легче всего обмениваются друг с другом энергией электроны. Поэтому для свободных электронов раньше всего устанавливается распределение скоростей, описываемое известной формулой Максвелла.

При наличии в плазме ЛТР температуру атомов и ионов можно определить по относительной интенсивности линий, сравнивая между собой интенсивности двух или более числа линий одной степени ионизации [7]:

$$\frac{I_{2}}{I_{1}} = \frac{g_{2}f_{2}\omega_{2}^{5}}{g_{1}f_{1}\omega_{1}^{5}} exp\left(-\frac{E_{2}-E_{1}}{kT}\right)$$

Подробно методика определения температуры изложена в [7,11,12]. В настоящей работе для определения температуры плазмы использовались спектральные линии Ar(I), Fe(I), Fe(II), Cu(II). На рисунке 3 представлен график зависимости  $lg[I\lambda/gA]$  от E для линий Ar(I), энергия ионизации  $(E_{ii})$  которого составляет 15,75 эВ. Вероятности переходов и силы осцилляторов взяты из работы [13].

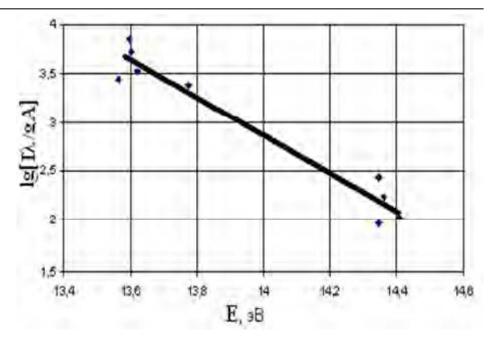


Рис. 4. Зависимость  $lg[I\lambda/gA]$  от Е для линий Ar(I).

Температуру определяем по наклону аппроксимированной прямой, используя выражение [7]:

$$T = -\frac{5400}{tg(\alpha)} \approx 5600K$$

При существенном отклонении от больцмановского распределения в плазме экспериментальные точки на графике будут располагаться не около прямой, а около некоторой кривой.

При этом становиться очевидным факт неприменимости метода и предупреждаются грубые ошибки в измерении. Однако необходимо при этом отметить, что в случае неравновесной плазмы можно также иметь прямолинейный участок, но это не гарантирует наличия больцмановского равновесия [11].

Результаты расчетов для различных пар Fe(I) ( $E_{\text{и}}$  – 7,87 эB), Fe(II) ( $E_{\text{и}}$  – 16 эB), Cu(II) ( $E_{\text{и}}$  – 20,291 эB) приведены в таблице 3. Вероятности переходов взяты из работ [14,15].

Точность определения температуры тем выше, чем больше разность энергий верхних уровней спектральных линий [7]. Ошибка в измерении может возникать и в том случае, если фотон на пути от излучившего атома до границ плазмы испытывает многократное поглощение другими атомами. Из-за большого числа столкновений возбужденное состояние поглотившего фотон атома может разрушиться без излучения и из плазмы выйдет меньше фотонов, чем было первоначально испущено.

Эффективность поглощения определяется силой осциллятора и количеством атомов в нижнем состоянии, поэтому искажения, связанные с так называемой диффузией излучения, более вероятны для более сильных линий. Полученные значения температуры говорят о том, что СВЧ плазма находится в состоянии близком к ЛТР.

Таблица 3. Результаты измерения температуры по линиям металлов

Э-т	λ, нм	T, K	ΔΕ, ϶Β	
Fe(I)	217,80 – 367,99	6152	2,2	
	217,80 - 364,78	6122	1,3	
	217,80 - 248,32	6641	0,7	
Fe(II)	249,32 - 259,83	6485	2,6	
	249,32 - 240,48	6657	2,2	
	253,89 - 258,58	6173	2,6	
	253,89 - 241,05	6240	2,1	
	259,83 - 253,89	6338	2,6	
Cu(II)	203,58 - 213,50	6334	0,6	
Ar(I)	по графику	5600	_	
Tcp. $\approx 6200 \pm 300 \text{ K}$				

Отличие полученных значений температур говорит о незначительном отклонении термодинамического равновесия в плазме от состояния больцмановского равновесия, вызванном возбуждением атомов в полях заряженных частиц и электрическим полем бегушей волны в скин-слое плазмы.

#### Заключение

В данной работе описана диагностика СВЧ плазмы по оптическому спектру излучения. Проведенные исследования показали, что плазма, находящаяся в СВЧ поле с частотой 2,45 ГГц, имеет состояние близкое к ЛТР. Так как плазмоид имеет форму вытянутого симметричного цилиндра, распределение температуры по диаметру не однородно. При введении в плазму аэрозоля, диаметр плазмы уменьшается до ~ 2 мм. Температура тяжелых частиц в центре плазмоида составляет порядка 5000-6000 К в зависимости от рассматриваемого элемента. Внешняя часть плазмы имеет более сильные молекулярные полосы, вследствие большого количества молекул на периферии разряда. Значения температуры атомов и плотности электронов могут варьироваться в зависимости от мощности, переданной в разряд, и от состава плазмы. Так известно, что внесение в разряд щелочных металлов увеличивает количество электронов и снижает температуру плазмы.

Конструкции СВЧ плазмотронов довольно разнообразны. ТІА (Torche Injection Axiale) и МРТ (Microwave Plasma Torch) – это два СВЧ плазмотрона, имеющие особенности в тракте передачи энергии в плазму и в части формирования плазмоида [9]. Полученные результаты сравним с параметрами плазмотронов, приве-

денными в работе [9] (табл.4). Электронная температура и плотность источника возбуждения спектров практически одинакова с источником МРТ. Получение высоких значений температуры тяжелых частиц удалось добиться в результате концентрирования энергии, уменьшении размера плазмоида и согласовании нагрузки на высоком уровне мощности.

Таблица 4. Параметры СВЧ плазмотронов и ICP [9]

П-тр	СВЧ	TIA	MPT	ICP
$n_e[m^{-3}]$	$3,5\cdot 10^{20}$	$3 \cdot 10^{21}$	$3 \cdot 10^{20}$	$2 \cdot 10^{21}$
T <sub>e</sub> [K]	$18 \cdot 10^3$	$20 \cdot 10^3$	$18 \cdot 10^3$	$12 \cdot 10^3$
$T_h[K]$	$7 \cdot 10^3$	$4 \cdot 10^{3}$	$3 \cdot 10^{3}$	$10 \cdot 10^3$

#### Литература

- 1. Пелипасов О.В., Максимов А.Ю., Путьмаков А.Н., Боровиков В.М. Разработка источника СВЧ плазмы для атомно-эмиссионного спектрального анализа// Труды XIII Международного симпозиума «Применение МАЭС в промышленности», Новосибирск, 2013, с. 51-58.
- 2. Боровиков В.М., Петроченко Д.В., Путьмаков А.Н., Селюнин Д.О. Универсальный генератор «Везувий-3» // Заводская лаборатория. Диагностика материалов. 2012. Т. 78, N 1-II. С.62-66
- 3. Jankowski K.J., Reszke E. Microwave Induced Plasma Analytical Spectrometry// RSC Publishing, 2011.
- 4. Путьмаков А.Н., Попков В.А., Печурин В.И. «Экспресс» новый спектрометр для АЭСА, Труды X Международного симпозиума «Применение МАЭС в промышленности», Новосибирск, 2009, с. 74-75.
- 5. Лабусов В.А., Попов В.И., Путьмаков А.Н., Бехтерев А.В., Селюнин Д.О. Анализаторы МАЭС и их использование в качестве систем регистрации и обработки атомно-эмиссионных спектров// Аналитика и контроль. 2005. Т. 9, № 2. С. 110-115.
- 6. Пелипасов О.В., Лабусов В.А., Семёнов З.В. Идентификация молекулярных полос в атомно-эмиссионных спектрах, зарегистрированных анализаторами МАЭС// Заводская лаборатория. Диагностика материалов. 2012. Т. 78, № 1-II. С. 44-49.
- 7. Лохте-Хольтгревен В. Методы исследования плазмы. Спектроскопия, лазеры, зонды.

Перевод с англ. под ред. С. Ю. Лукьянова. М.: Мир, 1971 год, – 550 с.

- 8. Yubero C., Garcia M.C., Calzada M.D. On the use of the  $H\alpha$  spectral line to determine the electron density in a microwave (2.45GHz) plasma torch at atmospheric pressure// Spectr. Acta. Part B Atomic Spectr, 01.2006.
- 9. Timmermans E. Atomic and Molecular Excitation Processes in Microwave Induced Plasmas // A Spectroscopic Study Eindhoven University of Technology, 1999, 138 c.
- 10. Griem H. R., Kolb A.C., Shen K.Y., Phys. Rev., 116, 4 (1959)
- 11. Гейдон А.Г., Вольфгард Х.Г. Пламя его структура излучение и температура: пер. с англ. М.: Металлургиздат. 1959. 330 с.

- 12. Полак Л.С. и др. Теоретическая и прикладная плазмохимия // Москва, Наука. 1975. 304 с.
- 13. Corliss, C.H., Shumaker, J.B. Transition probabilities in argon I// J. Res. Nat. Bur. Stand. Sec. A: Phys. Ch., Vol. 71A, No. 6, 1967, p. 575.
- 14. Corliss C.H. Experimental transition probabilities for spectral lines of seventy elements // National Bureau of Standards. Monograph, Hardcover, January 1, 1962.
- 15. Fuhr J.R. and Wiese W.L. A Critical Compilation of Atomic Transition Probabilities for Neutral and Singly Ionized Iron // JPCRD 35(4) pp. 1669-1809 (2006).

## DEFINING PARAMETERS OF MICROWAVE PLASMA IN THE TE10 WAVEFIELD EXCITED BY A 2.45 GHZ MAGNETRON

O.V. Pelipasov<sup>1,2,3</sup>, S.B. Zayakina<sup>4</sup>, A.Yu. Maksimov<sup>3</sup>, A.N. Putmakov<sup>1,3</sup>

<sup>1</sup>Institute of Automation and Electrometry SB RAS, 630090, Novosibirsk, Academician Koptyuga av., 1

<sup>2</sup>Novosibirsk State Technical University, 630073, Novosibirsk, K. Marx av., 20

<sup>3</sup>Optoelectronics, 630090, Novosibirsk, Academician Koptyuga av., 1

<sup>4</sup>V.S. Sobolev Institute of Geology and Mineralogy SB RAS, 630090, Novosibirsk, Academician Koptyuga av., 3

E-mail: pelipasov@vmk.ru

#### **Abstract**

This paper discusses the results of defining atom and ion temperatures and electron density in microwave plasma excited by a magnetron at a frequency of 2.45 GHz. The obtained parameters of excitation source are compared with characteristics of other microwave plasma sources and ICP.

**Keywords:** Ultra high frequency plasma magnetron source excitation spectra, inductively coupled plasma

#### ЖИІЛІГІ 2,45 ГГЦ-ТІ МАГНЕТРОНМЕН ҚОЗЫҒАН, ТЕ10 ТОЛҚЫН ӨРІСІНДЕГІ ӨЖС ПЛАЗМАЛАРДЫҢ ПАРАМЕТРЛЕРІН АНЫҚТАУ

О.В. Пелипасов<sup>1,2,3</sup>, С.Б. Заякина<sup>4</sup>, А.Ю. Максимов<sup>3</sup>, А.Н. Путьмаков<sup>1,3</sup>

<sup>1</sup>Автоматика және электрометрии РҒА институті, 630090, Новосибирск, Академик Коптюга даңғылы, 1. 
<sup>2</sup>Новосібір мемлекеттік техникалық университеті, 630073, Новосибирск, К. Маркс даңғылы, 20. 
<sup>3</sup>ООО «ВМК − Оптоэлектроника», 630090, Новосибирск, Академик Коптюга даңғылы, 1. 
<sup>4</sup>В.С. Соболев Геология және минералогия институті РҒА,630090, Новосибирск, Академик Коптюга даңғ., 3. 
Е-mail: pelipasov@vmk.ru

#### Аннотация

Бұл мақалада 2,45 ГГц жиілікте магнетронмен қысқа толқынды плазмада қоздырылатын электрондар тығыздығы мен ион және атом температураларын анықтау нәтижелері талқылануда. Қоздыру көздерінен алынған параметрлер ICP және басқа да қысқа толқынды плазма көздерінің сипаттамаларымен салыстырылады.

Түйінді сөздер: жоғары жиілікті плазмалық магнетронды көзі қозғау спектрін, индуктивті плазмалық